

# 高レベル廃棄物地層処分システムの性能評価における 地下水の地球化学的特性に関するモデル化

1992年9月

動力炉・核燃料開発事業団  
東 海 事 業 所

複製又はこの資料の入手については、下記にお問い合わせ下さい。

〒319-11 茨城県那珂郡東海村大字村松 4-33

動力炉・核燃料開発事業団 東海事業所

技術開発推進部・技術管理室

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to:  
Technology Management Section Tokai Works Power Reactor and Nuclear  
Fuel Development Corporation 4-33, Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun,  
Ibaraki-ken 319-11, Japan

動力炉・核燃料開発事業団 (Power Reactor and Nuclear Fuel Development  
Corporation) 1992

公開資料

PNC TN 8410 92-166

1992年9月

## 高レベル廃棄物地層処分システムの性能評価における 地下水の地球化学的特性に関するモデル化

油井三和<sup>1)</sup>, 武田精悦<sup>2)</sup>, 小室光世<sup>3)</sup>

牧野仁史<sup>1)</sup>, 濵谷朝紀<sup>1)</sup>, 梅木博之<sup>4)</sup>

石黒勝彦<sup>4)</sup>, 高瀬博康<sup>5)</sup>, 根山敦史<sup>6)</sup>

### 要旨

本報告書は、高レベル廃棄物地層処分システムの性能評価上重要な、地質環境条件の一つである地下水の地球化学的特性に関して、考察を行ったものである。

地下水の地球化学特性を性能評価の観点から把握するため、まず地下水の地球化学的特性に係わる因子を抽出した。次いでこれらの重要な因子に対して、一般的に適用可能と考えられる理論や実測データに基づく地球化学プロセスのモデル化を行った。

その結果、地下水の起源と地下水-岩石反応の進展を考慮した地球化学平衡モデルにより、我が国の大岐にわたる地下水組成について、性能評価の観点から以下の5種類のモデル地下水を設定することができた。

- ①降水系高pH型地下水
- ②降水系低pH型地下水
- ③海水系高pH型地下水
- ④海水系低pH型地下水
- ⑤降水系高pH型地下水（仮想的酸化性地下水）

<sup>1)</sup> 動力炉・核燃料開発事業団 東海事業所 環境技術開発部 地層処分開発室

<sup>2)</sup> 動力炉・核燃料開発事業団 本社 環境技術開発推進本部 地層科学研究グループ

<sup>3)</sup> 動力炉・核燃料開発事業団 人形峠事業所 環境資源開発課

<sup>4)</sup> 動力炉・核燃料開発事業団 本社 環境技術開発推進本部 処分研究グループ

<sup>5)</sup> 現、日揮株式会社

<sup>6)</sup> 現、コンピュータソフト開発株式会社

## 目 次

1 はじめに .....	1
2 多重バリアシステムの性能評価と地下水の地球化学的特性 .....	2
2.1 多重バリアシステムの構成と機能 .....	2
2.2 多重バリアシステムの性能評価上重要な地下水の地球化学的特性 .....	3
3 地下水の水質形成 .....	14
3.1 地下水の水質形成に関する一般的プロセス .....	14
3.1.1 降水の化学的特性 .....	14
3.1.2 土壌中の二酸化炭素 .....	14
3.1.3 主要なイオン組成の変遷過程 .....	15
3.1.4 電気化学的変遷過程 .....	18
3.1.5 炭酸塩鉱物を含む地層中の地下水変遷モデル .....	21
3.1.6 各地層中における地下水の変遷 .....	24
3.2 我が国の地下水の水質形成に関わる化学的環境条件 .....	30
3.2.1 土 壤 .....	30
3.2.2 岩 石 .....	31
3.2.2.1 岩石の分類 .....	31
3.2.2.2 我が国における岩石の分布 .....	33
3.2.2.3 岩石の風化 .....	34
3.2.2.4 岩石中の鉱物種 .....	36
3.2.3 地下水 .....	39
3.2.3.1 地下水の分類と我が国における地下水水質形成に関わる研究の概要 .....	39
3.2.3.2 我が国の地下水組成データ .....	40
3.2.3.3 地下水の酸化還元電位 (E h) .....	42
4 地下水化学モデル .....	76
4.1 モデル化の考え方 .....	76
4.1.1 平衡論的アプローチ .....	76
4.1.2 重要な地下水特性を支配する地球化学反応の抽出 .....	77
4.1.3 モデル地下水のタイプ .....	78
4.2 地下水化学モデルの作成 .....	80
4.2.1 地下水の化学的変遷モデルの作成手順 .....	80
4.2.2 モデル化 .....	80

5 解 析 .....	93
5.1 解析のための計算コードおよび熱力学データ .....	93
5.1.1 計算コード .....	93
5.1.2 热力学データ .....	93
5.1.2.1 既存の热力学データベースの種類 .....	93
5.1.2.2 平衡計算に使用した热力学データベース .....	94
5.2 解析結果及び実測値との比較 .....	94
5.3 モデル地下水に関する感度解析 .....	95
6 結 論 .....	107
7 今後の研究開発課題 .....	108
8 謝 辞 .....	109
付録1 使用した热力学データベース .....	111
付録2 地下水組成の感度解析 .....	157
付録3 シリカ鉱物の影響度解析 .....	166
付録4 風送塩による地下水組成の影響度解析 .....	168

## 1. はじめに

高レベル放射性廃棄物を長期にわたって安全に処分するため、人工バリアと天然の地層を多層に組み合わせた多重バリアシステムが考えられている。多重バリアシステムによる安全確保の機能を評価する上で、地下水の化学的条件は、人工バリア材料の長期的挙動、核種の溶解や緩衝材、岩石への吸着といった移行特性に影響を与える重要な環境因子である。ここでは、多重バリアシステムの性能評価の観点から、我が国の地下水の化学的条件を把握するための考察を試みる。

我が国においては、現在、多重バリアシステムの性能評価を行うにあたって、地域や岩種を特定せず、地質環境条件をできるだけ広く想定するという考え方方に立っている（原子力委員会、1989）。これにより、処分技術の適用範囲を広く考えることが可能となり、その技術的選択の幅が広がることとなる。我が国においてこれまで実際に測定された地下水組成等のデータに関する調査を行なった結果（瀬尾・清水、1992）では、大部分は、第四紀の地層や温泉、油田地帯などにおけるデータで地域的な偏りがあること、また、多重バリアシステムの性能評価上重要と考えられる酸化還元電位等の情報が得られていないことが明らかになっている。従って、これら既存の実測例から、我が国の地質環境条件をできるだけ広く想定するという考え方方に立って、地層処分が考えられている地下深部における地下水の化学的条件を導出することは難しい。

そこで、地下水の水質形成に関して、一般的に適用可能と考えられる理論や、多くの観測例に共通して見出しうる定性的傾向等に基づいて、主要な地球化学プロセスを考慮したモデル化を行い、地下水の化学的条件を定量化することとした。このようなモデル化にあたっては、まず多重バリアの性能評価の観点から、深部地下水の化学的条件を表す特性値について検討を行なった。次に、重要と考えられる特性に注目して、それを規定する種々の地球化学プロセスを我が国の地質学的、鉱物学的特徴を考慮しつつ検討した。最後に、これら重要な地球化学プロセスを抽出し、それらに基づいて水質形成過程をシミュレートすることによりモデル地下水を導出した。

## 参考文献

原子力委員会（1989）：地層処分研究開発の重点項目とその進め方。

瀬尾俊弘、清水和彦（1992）：我が国における地下水の水質に関するデータの収集・解析、  
動燃事業団技術資料、PNC TN7410 92-017.

## 2. 多重バリアシステムの性能評価と地下水の地球化学的特性

### 2.1 多重バリアシステムの構成と機能

地層処分システムにおいては、地下に広く存在する地下水がガラス固化体中の放射性核種を溶出させ、これを人間の生活圏に運ぶという過程への対策として、多重バリアシステムが考えられている。

ガラス固化された高レベル放射性廃棄物は、オーバーパックに封入され地層中に設置される。この際、オーバーパックと地層との間には粘土質の緩衝材が充填される。これらの人工的に設けられる多層の安全防護系が人工バリアである。一方、核種の収着、遅延といった安全防護機能を本来的にそなえている地層は天然バリアとよばれ、人工バリアと天然バリアのもつ種々の機能を多重に組み合わせたものが多重バリアシステムである。期待される機能は以下のようにまとめられる。

- ①透水性の低い緩衝材は、周囲からの地下水の浸透を制限し、その中で地下水の動きを極めて遅くする効果がある。これによって、ガラス固化体と地下水との接触を抑制する。
- ②オーバーパックは、透水性の低い緩衝材によって地下水の移動が制限されるため、腐食が生じにくく、ガラス質に封じ込まれた放射性核種を容器内に長期間閉じ込めておくことができる。
- ③オーバーパックが破損し、地下水が廃棄物と接触したとしても、緩衝材中に浸入する地下水の量は限られており、また長半減期の放射性核種の大部分はもともと深部の地下水に溶解しにくいと考えられていることから、ガラス固化体から溶出する放射性核種の量は制限される。また、地下水に対して比較的溶けやすい一部の核種については固化材であるガラスの保持機能が溶出を制限する。
- ④緩衝材中ではほとんど水の動きがないため、地下水中に溶け込んだ放射性核種の移動を拡散支配にする。また、緩衝材は放射性核種を収着しやすい性質を持っているので、それによっても核種の移動の程度を制限する。このため放射性核種の移動には長時間を要し、この間にその放射能を減衰させる。
- ⑤緩衝材中から地層に移動した放射性核種は、地層中の地下水の動きが緩慢であるうえ、岩石へ収着しながら移動するため、その動きは地下水の動きに比べてさらに遅くなる。この移動期間中に放射性核種の放射能を減衰させる。また、地層の複雑な空隙構造が、地下水中的放射性核種をいろいろな方向に分散させ、次第に希釈する。

このような多重バリアの構成と機能は例えば表2.1.1のようにまとめられている（原子力委員会、1989）。ここでは、表2.1.1に従って、多重バリアシステムの機能を表現すること

とする。また、多重バリアシステムの概念に基づいて、図2.1.1のようなオーバーパックの材料としては炭素鋼を、緩衝材としてはベントナイトを考えた人工バリアの具体的仕様例が示されており(五月女ほか, 1992), 以下、この仕様例を念頭において、実際に多重バリアシステムの性能評価を行う上で重要な地下水の地球化学的特性について考えることにする。

## 2.2 多重バリアシステムの性能評価上重要な地下水の地球化学的特性

多重バリアシステムの性能について評価を行うためには、地下水の存在を前提とし、ガラス固化体から溶出した核種が地下水を介して人間の生活圏にいたるという過程について検討を行う。このような過程は一種の想定であり、地下水シナリオとよばれる。地下水シナリオに従って、表2.1.1に示された多重バリアシステムの機能を考えた場合、それぞれの機能に対する地下水の化学的特性の影響については、概略次のようにまとめられる。

### (1) 緩衝材の地下水透水抑制機能への影響

緩衝材の候補材料であるNaベントナイトは、湿潤時の膨張による自己シール作用のために極めて高い止水性能を有する。この性能は、ベントナイトの主成分であるNa-モンモリロナイトの微細な層構造に起因すると考えられている。

この層構造、特に層間距離と膨潤特性は、層間に位置する交換性陽イオン、即ち $\text{Na}^+$ の電気化学的特性に依存する。このため、地下水中の陽イオンとベントナイトの層間の $\text{Na}^+$ とが交換することにより膨潤性に変化が起る。さらに、層間に $\text{K}^+$ イオンが固定されることで膨潤性、止水性に劣るモンモリロナイト/イライト混合層が形成されることが考えられる。

### (2) オーバーパックの放射性核種閉じ込め機能への影響

オーバーパックの候補材である炭素鋼の腐食は、純鉄の酸化過程であり、このため、平均的腐食速度は地下水の酸化還元電位(Eh)、もしくは地下水中の溶存酸素濃度に強く影響される。例えば、人工海水、人工淡水中に炭素鋼を浸漬させ、種々の環境条件下(空気中、窒素ガス吹き込み)で実験を行った結果、窒素ガス吹き込みの場合の方が腐食速度が小さくなる。(図2.1.2a, b)

また、炭素鋼の腐食においては、地下水中の陰イオン、特に $\text{Cl}^-$ イオンと $\text{HCO}_3^-$ イオンの比が腐食速度に影響を与えることが知られている。(図2.1.3)

### (3) 廃棄物の放射性核種溶出制限機能への影響

ガラス固化体からの核種の溶解については以下に示すように、一般に難溶性元素と可溶性元素でその溶出制限機能が異なると考えられる。

#### (i) アクチニド元素等難溶性の元素の溶解度への影響

これらの難溶性の元素は、一般に複数の原子価をとるものであり、低い原子価の

もの、即ち還元されたものの方がより溶解度が小さいという傾向がある。このため、地下水のEhは、これらの難溶性元素の溶解度に大きな影響を及ぼすこととなる。

また、これらの元素は一般に、地下水の陰イオンを配位子として、錯体や難溶性の塩を形成し溶解度を支配する。したがって地下水中の $\text{OH}^-$ (pH),  $\text{HCO}_3^-$ ,  $\text{SO}_4^{2-}$ ,  $\text{Cl}^-$ ,  $\text{PO}_4^{3-}$ ,  $\text{F}^-$ などの陰イオン濃度が上記の元素の溶解度に影響を及ぼすこととなる。

#### (ii) 可溶性元素の放出率、もしくはガラスマトリックスの浸出率への影響

Cs等の可溶性元素の溶出に対しては、ガラスマトリックスの浸出が律速機構となる。ガラスマトリックスの浸出率に対しては、pH(図2.1.4), 及び $\text{SiO}_2$ 濃度(図2.1.5)が影響することが知られている。

これらのうち、地下水中の $\text{SiO}_2$ は石英やケイ酸塩鉱物の溶解により主としてもたらされるものであり、ガラスマトリックスに対する $\text{SiO}_2$ の飽和濃度がアモルファスシリカの溶解度に対応するものであることから、地下水中の $\text{SiO}_2$ 濃度の影響は小さいと考えられている。

従って、ガラスマトリックスの浸出率に影響を与える地下水化学特性としては、pHが特に重要であると考えられる。

#### (4) 緩衝材の放射性核種吸着保持機能への影響

緩衝材が放射性核種を吸着する機構としては、主として、次の二つ(化学吸着)が知られている(例えばStumm and Morgan, 1981)。

##### (i) 陽イオン交換反応

Na-モンモリロナイトの交換性陽イオンである $\text{Na}^+$ イオンと、放射性核種とのイオン交換であり、地下水中の陽イオンが競合イオンとして働く。

##### (ii) 表面錯体生成反応

ベントナイト中のS-O-H部(Sはsurface(表面)を表す)が解離あるいは $\text{H}^+$ が結合して $\text{SO}_4^{2-}$ や $\text{SOH}_2^+$ となったものを吸着サイトとして、このサイトと放射性核種とが固体表面で錯体を形成する。吸着サイトの解離反応は地下水のpHに支配される。

このように、上記(i), (ii)に対して、それぞれ、地下水中の陽イオン濃度及びpHが重要な特性となる。また、Eh, 陰イオン濃度も放射性核種の化学形態を変化させるため、重要となる。

(5) 地層の放射性核種移動遅延機能への影響

放射性核種移動遅延機能は、岩石による放射性核種の吸着によるものであり、化学的吸着としては、主に核種の沈殿と吸着が考えられる。沈殿に関しては、核種の液相・固相化学形態を支配する地下水のEh, pH及び陰イオン濃度が重要な特性となる。また、吸着に関しては、緩衝材と同様、地下水のEh, pHと陽イオン及び陰イオン濃度が大きな影響を及ぼすと考えられる。

(6) 地層の放射性核種希釈分散機能への影響

放射性核種の分散は、核種の移動遅延に係わる移行経路が空間的に不均一であることに起因するものである。従って、(5)に示す地下水のpH, Eh及び種々のイオン濃度の空間的分布が分散効果に影響を及ぼすと考えられるが、その具体的機構と影響の程度については不明点が多い。

なお、地下水の温度（もしくは系の温度）は、(1)～(5)に挙げられた各プロセスの平衡論及び速度論の双方の点で影響を及ぼす。

以上に述べた、多重バリアシステムの機能に対する地下水の化学的特性の影響をまとめると表2.1.2のようになる。例えば、いくつかの放射性元素(Pu, Np, U, Am, Ra)の溶解度について地下水化学特性依存性を調べるため感度解析を行った結果、影響を与える特性として、各元素の推定沈殿種によって異なるものの、pH, Eh, 陰イオン( $\text{HCO}_3^-$ ,  $\text{SO}_4^{2-}$ )濃度で有ることを確認している。次章以降では、ここでまとめた重要な特性に着目して、地下水のモデル化について検討する。

参考文献

原子力委員会（1989）：地層処分研究開発の重点項目とその進め方

Ishikawa, H. et al., (1991) ; Long Life Prediction of Carbon Steel Overpack for Geological Isolation of High-level Radioactive Waste, NACE.

Larson, T. E., Skold, R. V. : Corrosion, 14, 285t(1958)

PNC (1991) : 地層処分研究開発の現状( 平成元年度), 動燃事業団技術資料, PNC TN1410 91-009.

五月女敦, 藤田朝雄, 原 啓二, 納多 勝 (1992) : 地層処分の空洞安定性の検討, 動燃事業団技術資料, PNC TN1410 92-055.

Stumm, W. and Morgan J. J. (1981):

Aquatic Chemistry, 2nd ed., A Wiley-Interscience, USA.

表2.1.1 多重バリアシステムの構成とその機能

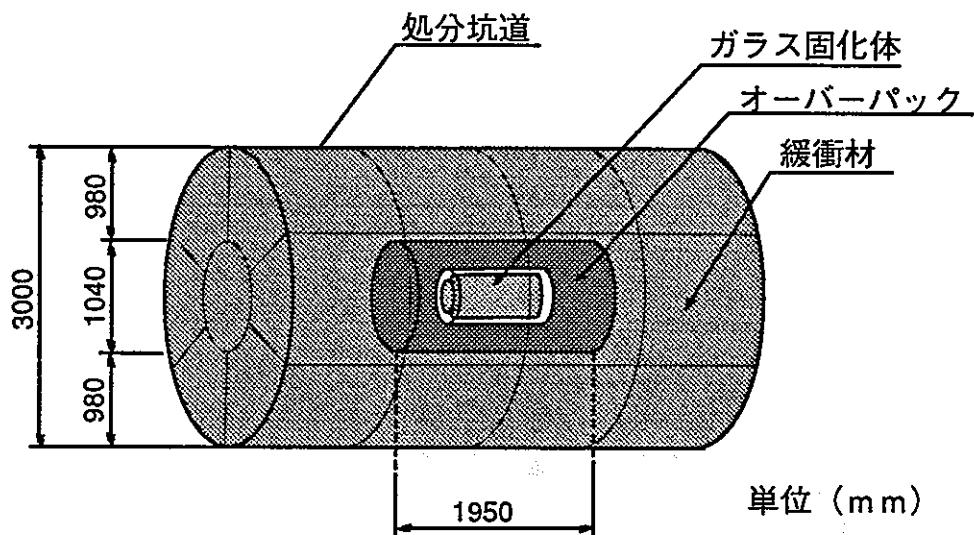
<u>安全確保の要件</u>	<u>多重バリアシステムを構成する各バリアの機能</u>	<u>安全確保上の位置づけ</u>
地下水接触の抑制	緩 衝 材 の 地下水透水抑制機能  オーバーパックの 放射性核種閉じ込め機能	初期の高い放射能を確 実に減衰させる
溶出・移動の抑制	廃 棄 物 の 放射性核種溶出制限機能  緩 衝 材 の 放射性核種収着保持機能	長寿命核種を確実に ニアフィールド中にと どめる
環境安全の確認	地 層 の 放射性核種移動遅延機能  地 层 の 放射性核種希釈分散機能	廃棄物が人間に影響を 及ぼさないことをさら に確かなものとする

表2.1.2 地下水化学特性の多重バリアシステム機能への影響

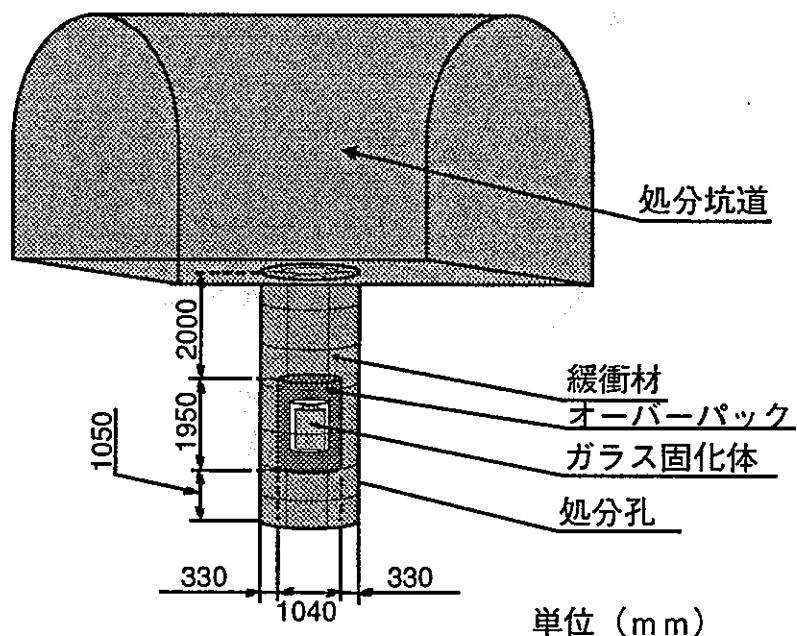
地下水化学特性 多重バリアシステムを構成 する各バリアの機能	Eh	pH	陽 イオン 濃度	陰 イオン 濃度
緩衝材の地下水透水抑制機能			○	
オーバーパックの放射性核種閉じ込め機能	○	○		○
廃棄物の放射性核種溶出制限機能	○	○		○
緩衝材の放射性核種吸着保持機能	○	○	○	○
地層の放射性核種移動遅延機能	○	○	○	○
地層の放射性核種希釈分散機能	上記条件の空間的不均一性			

Eh : 酸化還元電位

陽イオン濃度 :  $K^+$ ,  $Na^+$ ,  $Ca^{2+}$ ,  $Mg^{2+}$  など陰イオン濃度 :  $HCO_3^-$ ,  $SO_4^{2-}$ ,  $Cl^-$ ,  $PO_4^{3-}$ ,  $F^-$  など



(a) 坑道横置方式



(b) 処分孔縦置方式

図2.1.1 人工バリアの仕様例（五月女ほか、1992）

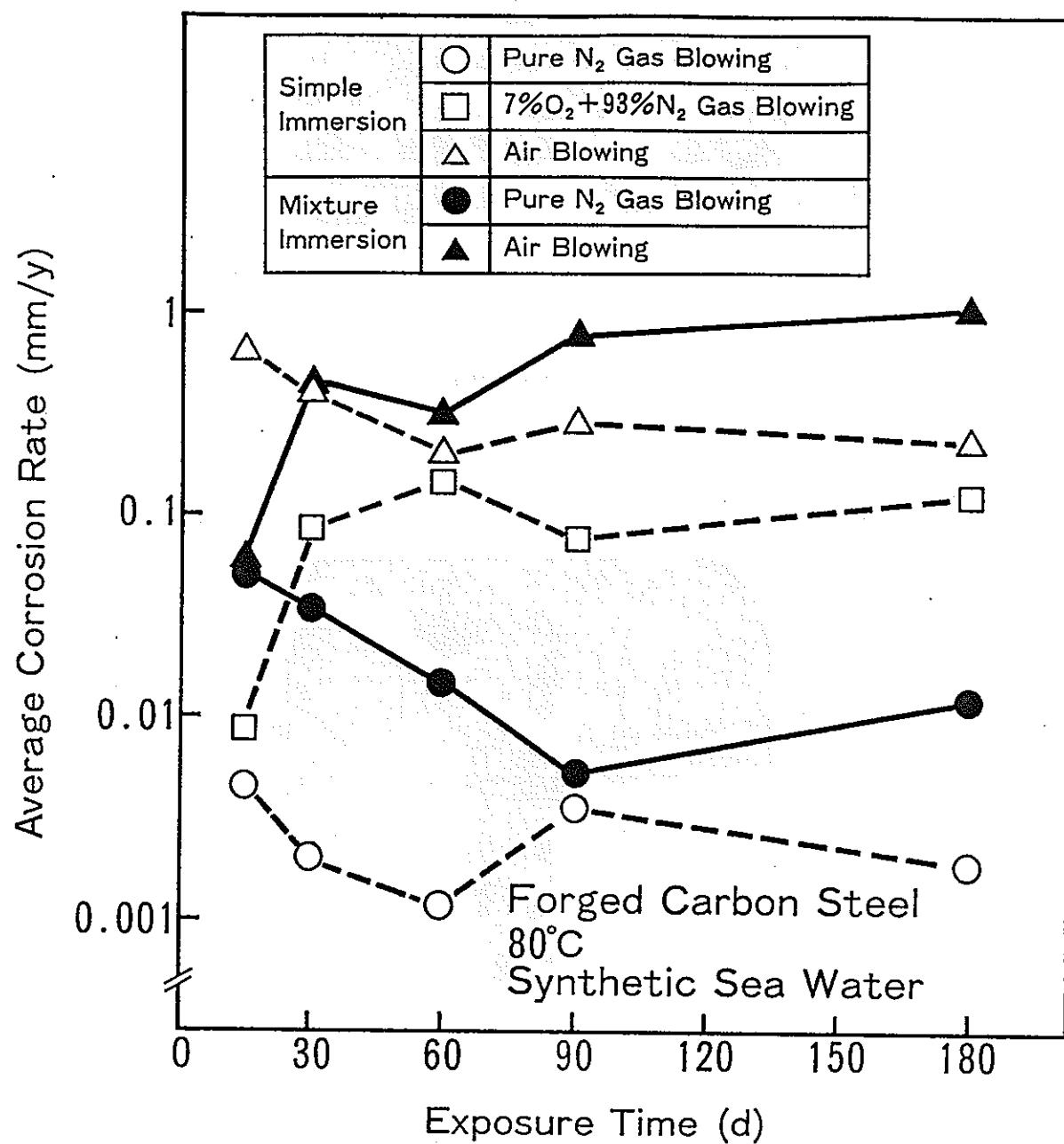


図2.1.2 a 腐食速度と溶存酸素濃度の関係（人工海水系）（Ishikawa, H. (1991)による）

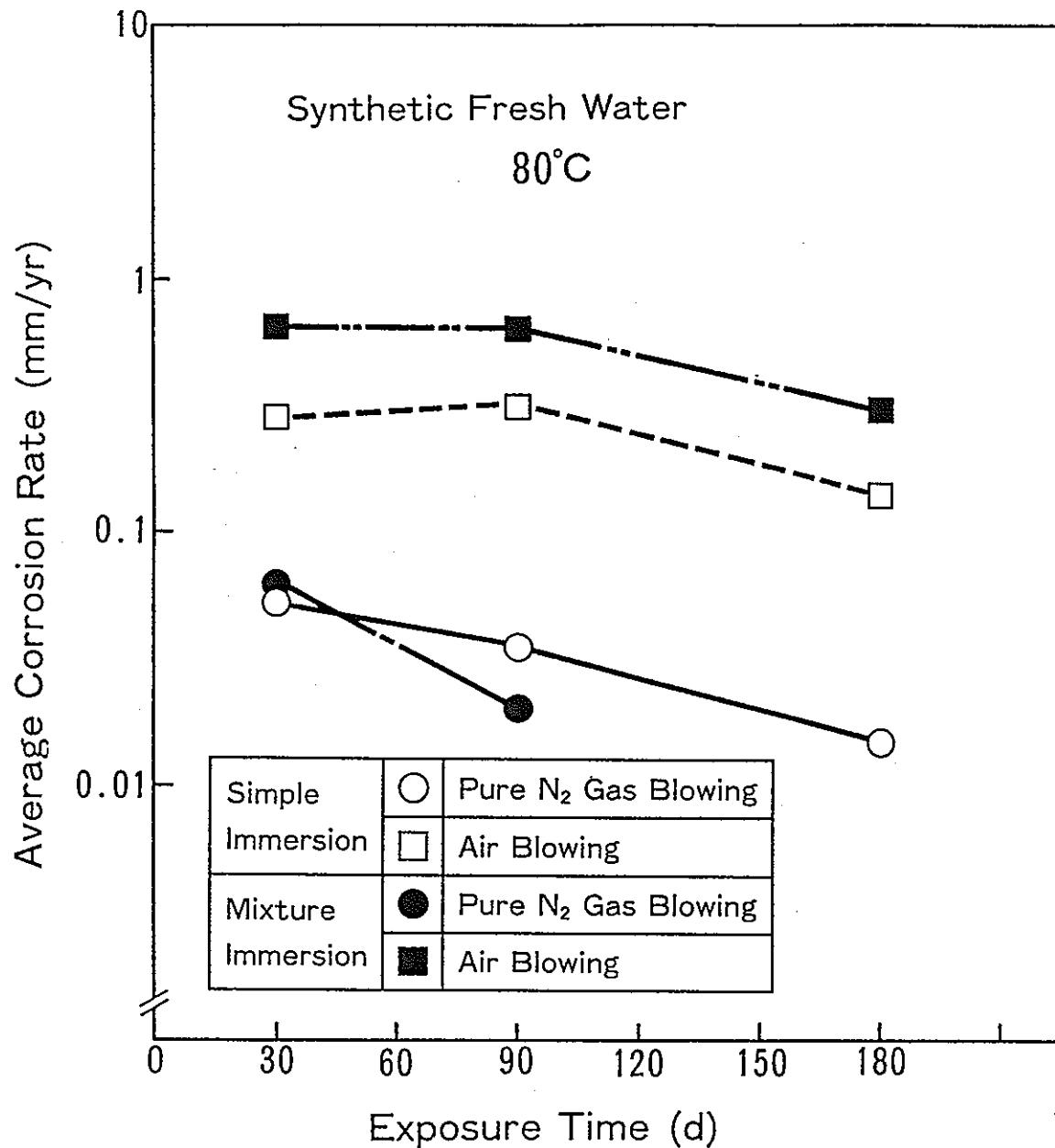


図2.1.2 b 腐食速度と溶存酸素濃度の関係（人工淡水系）（Ishikawa, H. (1991) による）

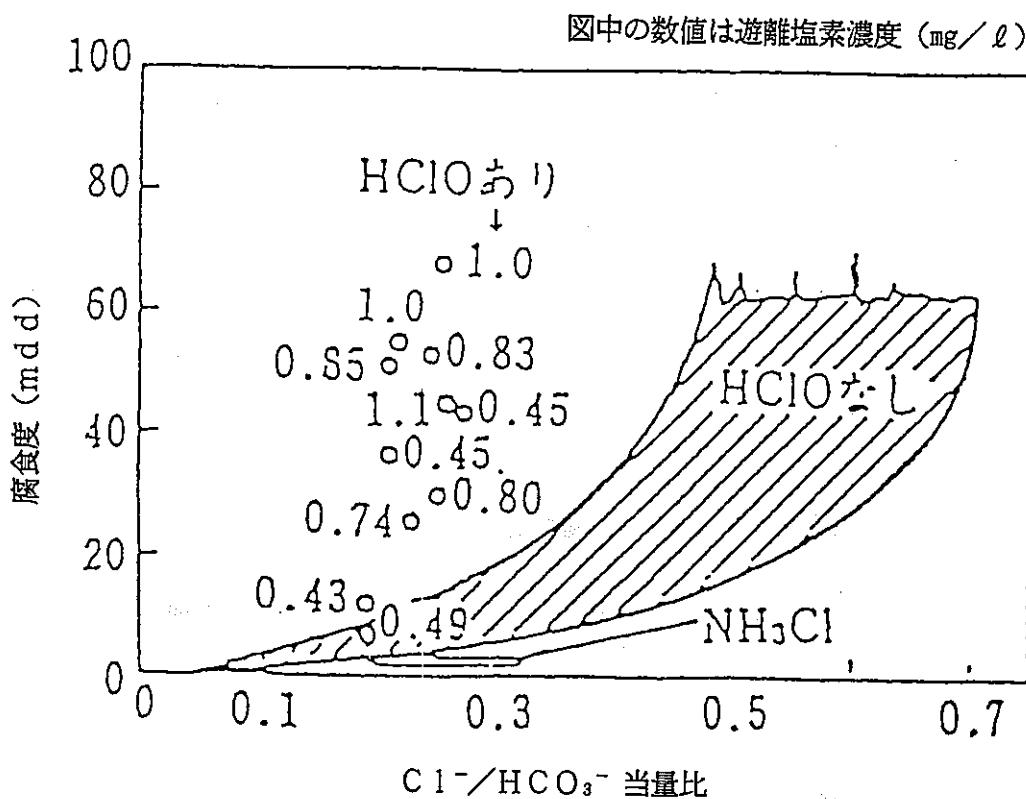


図2.1.3 鋼の腐食度と $[\text{Cl}^-]/[\text{HCO}_3^-]$ との関係 (Larson et. al, (1958))

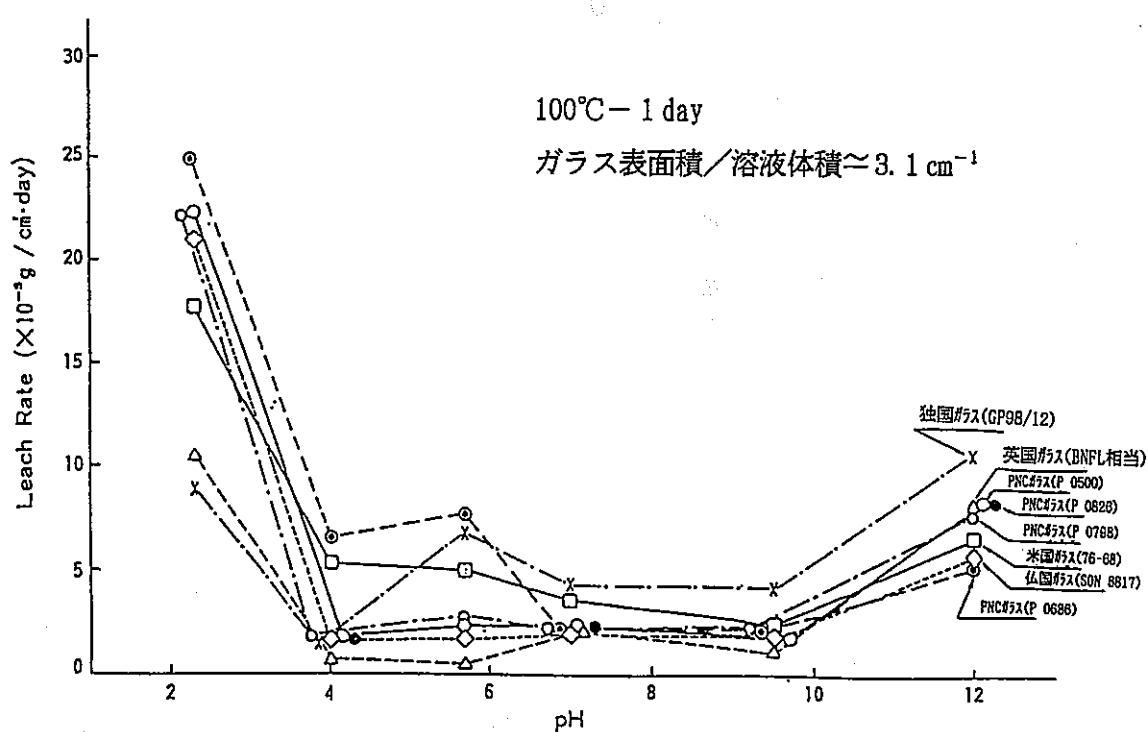


図2.1.4 ガラス浸出率とpHとの関係 (PNC (1991))

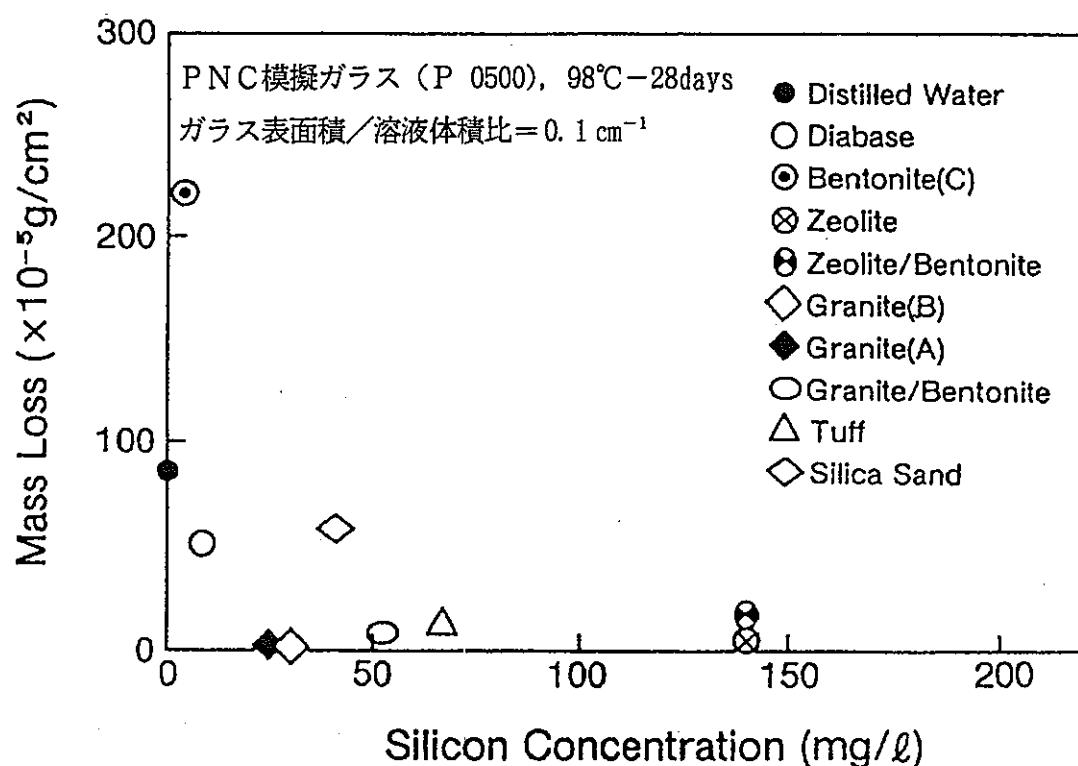


図2.1.5 ガラス浸出率とSi濃度との関係 (PNC (1991))

### 3. 地下水の水質形成

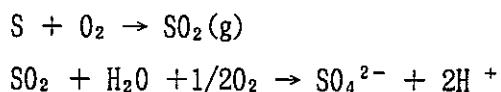
地下水の水質形成に関するモデル化にあたっては、一般的なプロセスを概観し、2章で着目した特性がどのように決定されてくるかを把握することとした。さらにその一般的プロセスについて、我が国の地質環境条件に照らしてその適用性を考慮した。

#### 3.1 地下水の水質形成に関する一般的プロセス

地下水の化学的特性は、以下に示す広範な因子から成る地下水化学システムにおいて、その前提となる種々の地質環境条件とその関係により規定されることとなる。ここでは、Freeze and Cherry (1979)の参考書に基づき、地下水の化学的特性の主要な部分について引用し、考察する。

##### 3.1.1 降水の化学的特性

地表に至る降水には、雨水や雪等がある。雨水中の総溶解固体量(TDS)は、数mg/lから数十mg/lまでの幅をもっており、融雪中のそれは、種々のフォールアウトが凝集するため雨水よりも高いことが多い。都市部以外の雨水と融雪のpHは通常5～6である。この場合のpHの主要な決定因子は、大気中の二酸化炭素( $10^{-3.5}\text{ bar}$ )である( $10^{-3.5}\text{ bar}$ の二酸化炭素と平衡にある純水のpHは5.7)。都市部の雨水と融雪のpHは、5.7よりもかなり低く、しばしば3～4の値を示す。この場合には、pHを低下させる要因として、種々の産業に伴い放出される粒子状のS及び気体状の $\text{SO}_x$ ,  $\text{NO}_x$ などが重要である。例えば粒子状のSは次のような反応によりpHを低下させる。

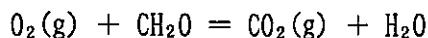


$\text{CO}_2$ に加え、大気中には $\text{O}_2$ ,  $\text{N}_2$ 及び $\text{Ar}$ が含まれ、雨水、融雪はこれらと気液平衡に相当する量を含む。これらのうち、地下水の地球化学的特性という観点から重要な成分は $\text{O}_2$ である。溶存酸素は、地下水の酸化還元条件に影響を与えるためである。一般的に、雨水及び融雪は極めて希薄な溶液であり、若干酸性であり、かつ酸化性である。

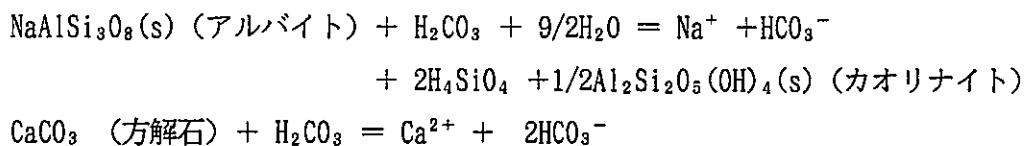
##### 3.1.2 土壤中の二酸化炭素

一般に、地下に浸透する水は、地表部の土壤を通過する。ここでは、土壤とは地表にあり物理的、化学的、もしくは有機的プロセスにより風化して植物の生育に適した条件を有する層を指す。土壤はそこを通過する水の化学的特性に大きな影響を及ぼす。土壤中で生

じる重要な反応を図3.1.1に示す。土壤中で生成される物質で、地球化学的に最も重要なものは、 $H_2CO_3$ であり、これは $CO_2$ ガスと $H_2O$ との反応によるものである。 $CO_2$ ガスは、有機物の腐敗と、植物の呼吸作用によりもたらされる。これらのうち、主要な $CO_2$ ガスの供給源は有機物の腐敗であり、これは次の反応式で表される。



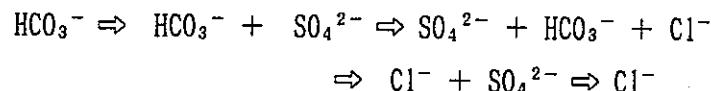
この他に、有機物による硫酸塩や硝酸塩の還元によっても $CO_2$ ガスは発生するが、その寄与は小さいと考えられる。これらの反応により発生する $CO_2$ ガスのため、土壤中の気相部の $CO_2$ ガス分圧は、一般に $10^{-3} \sim 10^{-1}$ barと、大気中のそれよりも高い値を示す。この $CO_2$ ガス分圧に対応する液相のpHは、 $CO_2$ ガス分圧 $10^{-1}$ barにおいて4.3～4.5と雨水、融雪のpHを下回ることとなる。このように $CO_2$ ガスを多く吸収した水が土壤中を通過する際には、生成した $H_2CO_3$ のために鉱物を溶解する。代表的な反応としては、



がある。 $H_2CO_3$ はこれらの反応により消費されるが、有機物の酸化と植物の呼吸作用により新たに $CO_2$ ガスが発生され、これが水と反応することにより $H_2CO_3$ は補われる。このようにして、上記の鉱物の溶解は連続的に生ずることとなる。このほか、酸素と還元性の鉄鉱物〔たとえば黄鉄鉱( $FeS_2$ )〕との反応によっても、酸が生成する。また、生化学的過程によって、フミン酸、フルボン酸等の有機物が生ずるが、これらの酸の影響は、上述した炭酸に比して小さいと考えられる。

### 3.1.3 主要なイオン組成の変遷過程

地下水が飽和層中を流れる際には、一般にTDSと主要イオン濃度が増大する。このため、多くの調査例においては、地下水を供給する側の浅層地下水中的TDSが、深部地下水や地下水流域の浅層地下水よりも低いことが報告されている。オーストラリアにおける10,000件以上の地下水分析例は、地下水が海水の組成に向けて漸次変化していくことを示している(Chebotarev, 1955)。この調査例においては、以下のように地下水中的主要な陰イオンの組成が変化するとしている(Chebotarev Sequence)。



( $\Rightarrow$  : 移行距離もしくは年代の増大)

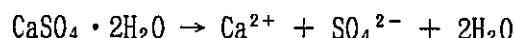
広範な堆積層においては、Chebotarev Sequence は次のように深さとの相関で説明することができる (Domenico, 1972)。

- ① 上部層；すでに風化の進んでいる岩石中を通過した地下水であり、主要な陰イオンは $\text{HCO}_3^-$  であり、TDS が低い。
- ② 中部層；地下水の流れがよりゆるやかであり、TDS が高く、 $\text{SO}_4^{2-}$  が主要な陰イオンである。
- ③ 下部層；地下水が停滞しており、 $\text{Cl}^-$  濃度及びTDS が高い。

地球化学的見地からは、上記の陰イオンの変遷過程は 2 つの主要な変数により説明される。すなわち、鉱物の賦存状況と鉱物の溶解度である。

地下水中の $\text{HCO}_3^-$  は、通常土壤中の $\text{CO}_2$  ガスと方解石もしくはドロマイドの溶解に起因している。したがって、土壤中の $\text{CO}_2$  ガス分圧と方解石及びドロマイドの溶解度が通常は TDS の制限因子として働く。土壤中での典型的な $\text{CO}_2$  ガス分圧は $10^{-3} \sim 10^{-1}$  bar にあり、この状況では方解石もしくはドロマイドの溶解による $\text{HCO}_3^-$  平衡濃度は 100~600 mg/l となる (図 3.1.2)。方解石やドロマイドは、ほとんど全ての堆積岩中に有意な量が存在し、かつ、 $\text{CO}_2$  ガスを吸収した地下水と接触した場合、これらの鉱物の溶解が速やかに生ずるため、地下水供給域では $\text{HCO}_3^-$  が支配的な陰イオンとなる。

表 3.1.1 は、種々の鉱物の調和溶解反応 (congruent dissolution) をまとめたものであり、堆積岩中に $\text{SO}_4^{2-}$  もしくは $\text{Cl}^-$  を供給し得るいくつかの鉱物が存在することを示している。代表的な $\text{SO}_4^{2-}$  供給源となる鉱物は石コウ ( $\text{CaSO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ ) 及び硬石コウ ( $\text{CaSO}_4$ ) であり、これらは地下水と接触した場合速やかに溶解する。石コウの溶解は、次の反応式により表される。



石コウや硬石コウは、方解石やドロマイドに較べてかなり溶けやすいが、岩塩 ( $\text{NaCl}$ ) やシルビンのような $\text{Cl}^-$  を含む鉱物に較べると溶けにくい。もし方解石 (もしくはドロマイド) や石コウが 25°Cにおいて淡水と接触した場合、水は塩分を含んだものとなり、 $\text{CO}_2$  ガスの分圧 $10^{-3} \sim 10^{-1}$  bar に対応する TDS は 2,100~2,400 mg/l となる。もし、堆積岩中

に十分な方解石もしくはドロマイト及び石コウが存在すれば、地下水組成はこれらと平衡状態となるまで変化し、主要な陰イオンは  $\text{SO}_4^{2-}$  となり、Chebotarev Sequence 上では、 $\text{SO}_4^{2-} - \text{HCO}_3^-$  相にまで変遷が進むこととなる。ほとんどの火山性以外の堆積岩中で、かなり長い移行過程を経た地下水が必ずしも主要陰イオンとして  $\text{SO}_4^{2-}$  を多く含まないのは、石コウや硬石コウがトレース量以上含まれることが稀であることによる。多くの浅層部では、これらの鉱物は存在しなかったか、あるいはすでに地下水により溶解・移動させられたかである。つまりChebotarev Sequence 上の  $\text{HCO}_3^- - \text{SO}_4^{2-}$  相が出現するか否かは、石コウや硬石コウの存在による。十分な時間が経過すれば、地下水の移行経路に位置する方解石、ドロマイト、石コウ及び硬石コウ等の可溶性鉱物を完全に溶かし去ってしまう。しかし、地下のシステムがこのような段階にまで変遷することは稀である。これは、地層の隆起や堆積作用、氷河作用が生じるためである。

堆積岩中の深部地下水や、まれには浅部の地下水においても、地下水組成が、主要陰イオンとして  $\text{SO}_4^{2-}$  を含む相から  $\text{Cl}^-$  が支配的となる相へと変化する。これは、岩塩やシルビン等の  $\text{Cl}^-$  を含む鉱物と地下水とが接触した場合に生ずる現象である。岩塩やシルビンは、かつて閉じ込められた塩水が、蒸発する過程で生じたものである。これらの鉱物は極めて溶けやすく、表3.1.1に示すように、その溶解度は方解石、ドロマイト、石コウや硬石コウのそれよりも数桁高い。堆積作用によりもたらされる  $\text{Cl}^-$  を含む鉱物は、地下水に速やかに溶解する。 $\text{Cl}^-$  が支配的な陰イオンとなるのは、一般に深部の地下水、もしくは長い移行過程を経た地下水に限られ、これは移行経路に存在する  $\text{Cl}^-$  を含む鉱物を溶解することによって、徐々に  $\text{Cl}^-$  濃度が上昇することによる。もし、長い移行過程を経ていない地下水が相当量の岩塩と接触した場合、地下水は他の鉱物の存在によらず  $\text{Cl}^-$  相に変化する。シルト岩、頁岩、石灰岩、もしくはドロマイト層中には、 $\text{Cl}^-$  を含む鉱物は極微量しか存在せず、このため、地下水中的  $\text{Cl}^-$  は、主として拡散によりもたらされることとなる。 $\text{Cl}^-$  は、微小な空隙部やdead-end poresから、もしくは亀裂を有する地層においては岩体マトリクスから地下水の主要な移行経路へと移動する。拡散は、極めて緩やかなプロセスであり、このため、地下水が  $\text{HCO}_3^-$  相から  $\text{SO}_4^{2-}$  相へ、そして  $\text{Cl}^-$  相へと変化する過程には多大な時間を要する。このことが、鉱物の溶解度のみに着目した議論から推測されるのと異なり、地下水の移行距離が比較的短い場合、実際の地層中では段階的に相変化が生じないことの理由となっている。

陰イオンに係わる組成変化の過程と移行距離の増大に伴うTDS の増大傾向は、実際の地下水組成の解釈に当たって多くの情報を引き出し得る一般的理論 (Chebotarev Sequence) である。なお、この一般的理論の主要な例外としては、地下水組成が  $\text{HCO}_3^-$  相、もしくは  $\text{SO}_4^{2-}$  相から先へ変化しない場合が指摘できる。堆積岩中では、Chebotarev Sequence か

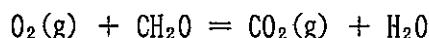
らの逆行現象が生じ得る。このような例としては、 $\text{SO}_4^{2-}$  の生化学的還元による $\text{SO}_4^{2-}$  濃度の減少と $\text{HCO}_3^-$  濃度の増大をもたらす現象がある。

主要な陽イオン濃度については、一般に、大きな変動幅を有している。陽イオン交換作用は、陽イオン組成変化の過程にしばしば変化と逆行をもたらすため、陰イオンについてのChebotarev Sequence のように有効な一般化を行うことは困難である。しかし、地層のタイプ毎に3.1.6項にその特徴を概観することにする。

### 3.1.4 電気化学的変遷過程

主要なイオンについての変遷過程が、多くの地下水分析例の解釈によって見いだされ、その後、地球化学的理論により説明されたのに対して、以下の電気化学的変遷過程はまず地球化学的理論により構築されたものであり、実測例による確認は必ずしも完結してはいない。

電気化学的変遷過程とは、地下水が移行するに従い、その酸化還元電位(Eh:標準水素電極に対する電位差)が低下する傾向と対応している。この傾向は、Germanovら(1958)によって見い出されたものである。地下水の供給源となる雨水や融雪は、大気中の酸素と接していることから、高いEhを示す。〔溶存酸素は高く、Ehは750mV付近を示す(pH=7)〕。有機物に富む土壌中では、有機物の酸化が地下水中のほとんど全ての溶存酸素を除去することとなる。このプロセスは、有機物を動植物界に広く分布する炭水化物のうち最も簡単な $\text{CH}_2\text{O}$ で表せば、



として示される。したがって、電気化学的変遷過程に関する興味ある問題は、「地下水が土壌中を通過して地下水盆に浸入する際に、そのEhがどの程度低下するか?」というものになる。土壌中の酸素消費の程度は、土壌の構造、空隙率と透水性、有機物の特性と深さ方向の分布、水の浸透の程度、地下水位、及び温度によって異なる。地下水中の溶存酸素は、地下水の電気化学的特性に係わる重要な因子のひとつであるにもかかわらず、研究例は必ずしも多くはない。しかし、その少ない例に基づいても、以下の一般化を試みることが可能である。

- (i) 砂質、もしくはレキ質の土壌や、石灰岩が地下水供給域となる場合、浅部の地下水は一般に検出可能なレベルの溶存酸素濃度を示す(0.1mg/l以上)。
- (ii) シルト、もしくは粘土質の土壌が地下水供給域となる場合、浅部の地下水は一般に検出可能なレベルの溶存酸素濃度を示さない。

(iii) 亀裂状の岩体において、その上部に土壌がほとんど存在しない場合には、一般に検出可能なレベルの溶存酸素濃度を示す地下水が地下の深くまで浸入している。地下水の循環系全体が酸化性の場合もある。

砂質堆積層中の浅部地下水がかなり高い溶存酸素濃度を示すことは、土壤中の有機物存在量が少なく、かつ、地下水の浸透速度が大きいことによって説明される。溶存酸素濃度が、検出限界以下となるまで消費されたあとも、Ehはまだ高いレベルにとどまっている。バクテリア等による溶存酸素の消費は、このあとも継続し、ついには、これらの好気性バクテリアの生存可能な領域を超えて進行することもある。

地下水のEhの変化に寄与し得る反応としては、このほかに、表3.1.2に示すように二価の鉄イオン、アンモニアイオン、マンガンイオン及び溶存イオウ種が関係するものが挙げられる。これらの反応での、酸素消費量は生化学的過程に比して小さいが、地下水のEhの変化に及ぼす影響は大きい。Stumm and Morgan(1981)は、閉じた系における有機物とこれに必要な養分とを投入した場合、有機物の酸化により $O_2$ が消費されたあと、 $NO_3^-$ が還元されることを示している。もし、マンガンが存在すれば、 $MnO_2$ の還元が $NO_3^-$ の還元と同様のpH、Ehレベルにおいて生じ、引き続いて、三価の鉄が還元される。また、十分な還元条件が達成される場合には、 $SO_4^{2-}$ から $H_2S$ もしくは $HS^-$ へ還元される。この際、ほとんど同時に有機物の $CH_4$ への還元が生ずる場合もある。このような電気化学的変遷過程は表3.1.3のようにまとめられる。

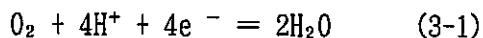
以下にこれらの酸化還元反応に基づき主要な地下水のEhの一般的な変化について説明する。地下水の循環を考慮すると、地下水のEhは、主として、(a)起源と初期条件(涵養する水中の酸素の量など)、(b)地下水中の酸化還元に関与する化学種の種類と量、(c)地下水の通過する岩石中の鉱物や有機物で酸化還元に関与するものの種類、量と反応性、(d)水の循環速度に依存していると考えられる(Drever, 1988)。これらのそれぞれについて一般化することは、地下水や岩盤の地域性により困難であろう(Drever, 1988)。しかし、深部地下水については、いくつかの同位体組成や透水係数のデータが示唆するように、その循環速度が極めて緩慢としているなら、主として(b)、(c)つまり、地下水および地下水が涵養している岩石中の酸化還元に関与するものの種類と量に依存するものと考えてよい。このような深部地下水の環境における酸化還元過程においては、上に述べたように、僅かな種類の元素(H, C, N, O, S, Fe, Mn)だけが関係している。それぞれの酸化還元反応に対応するEhの値は熱力学的に計算できる。

図3.1.3は天然水において広く出現する酸化還元反応について、常温・常圧下での計算結果をEh-pHダイヤグラムで示したものである(Drever, 1988)。地下深部を想定した圧力においても傾向は同様であると考えられる。酸化還元緩衝作用(Drever, 1988)の考え方に基

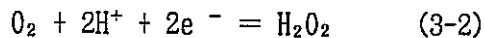
づき、天然水のEhについてEh-pH ダイヤグラム上での位置づけを以下に示す。

図3.1.4は有機物の分解を例に水のEhの変化を模式的に示した例で、図3.1.3のpH=7の断面とみなせるものである。ここで水は初生的に大気中の酸素と平衡にあり系中に酸素は付加されないと仮定する。

有機物の酸化分解が進むと系中の酸素が消費されるが、酸素が残っている限りEhは高い状態で保持される（①）。酸素を含む水のEhについては一致した見解が得られていない。酸素の還元は全体的には、



で表されるが、一般的に1段階では起こらず、以下の2段階で起こることも考えられる。



(3-3)は(3-2)より反応が遅いため、Ehは(3-2)によって制御されているという考え方もあるが(Breck, 1974)、あるものは(3-2)に、またあるものは(3-3)に制御されているよう見える系もあり、酸素を含む水のEhについては特定の酸化還元反応と平衡でなく、したがって、特定のEhを示さないという考え方(Stumm, 1978)が受け入れられている。ここでは、酸素を含む水のEhが高いということで(3-1)のEhを用いる。

次に、酸素が消費され尽くすと、Ehは系中の二酸化マンガンが還元されるレベルへと急激に変化する（②）。二酸化マンガンが還元されている間はEhは一定に保たれる（③）。

二酸化マンガンが枯渇すると、Ehは再び急激に変化し（④）、酸化第二鉄が還元されるレベルで保持される（⑤）。

さらに酸化第二鉄が枯渇すると急激に変化し（⑥）、硫酸塩が還元されるレベルへと移行する（⑦）。このようにある酸化還元反応が進行している際、系のEhの変化がその反応により制御されてほぼ一定に保たれる効果を酸化還元緩衝作用という。

酸化還元緩衝作用に基づけば、Ehは特定の酸化還元反応により制御された特定の値を持つことが期待される。緩衝されない範囲（この例では②、④、⑥）は不安定であるため、有機物の酸化分解に限らなくとも、この考え方は広く適用できる。したがって、図3.1.4では、水圏の環境により図中のいずれかの線上に制御されていると考えられる。例えば、マンガンや鉄を考えなくてもよい系では、酸素の消費と硫酸塩の還元を考慮すればよいこ

とになる（図3.1.5）。なお、酸化性の水（例えば、酸化的海水や湖沼水）と還元性の水（例えば、堆積物中の間隙水）との拡散によりEhが制御されている場合には、この考え方は適用されないと考えられる(Drever, 1988)。

### 3.1.5 炭酸塩鉱物を含む地層中の地下水変遷モデル

#### (1) 開放系での炭酸塩鉱物の溶解

方解石やドロマイトという炭酸塩鉱物を含む地層中を浸透する雨水や融雪水は、通常、これらの鉱物を、その飽和レベルにまで溶解する。そして、もし、この溶解が二酸化炭素ガス存在下の水中で生ずる場合、この系は開放系として定義される。開放系での炭酸塩鉱物の溶解についての概念モデルは次の様なものである。

- (i) 水は、生化学的酸化プロセスと植物の呼吸作用とにより一定に保たれる分圧( $\text{CO}_2$ ガスの発生と散逸とが均衡する値)の $\text{CO}_2$ ガス相を有する土壤中を浸透する。
- (ii) 土壤中を浸透する水は、気相部の $\text{CO}_2$ と速やかに反応し、平衡に到達する。
- (iii) さらに、土壤中を浸透する水は、土壤中方解石を溶解する。

この様な概念モデルに基づき、種々の $\text{CO}_2$ ガス分圧と平衡に達している水に対する方解石、及びドロマイトの溶解によるpH、及び $\text{HCO}_3^-$ の変化は次式により計算される。

$$K_{\text{CO}_2} = [\text{H}_2\text{CO}_3] / P_{\text{CO}_2}$$

$$\sum z_c m_c + \sum z_a m_a = 0$$

$$K_{\text{H}_2\text{CO}_3} = [\text{H}^+] [\text{HCO}_3^-] / [\text{H}_2\text{CO}_3]$$

$$K_{\text{HCO}_3^-} = [\text{H}^+] [\text{CO}_3^{2-}] / [\text{HCO}_3^-]$$

ここで、 $K$ は平衡定数、 $[ ]$ は水溶性化学種の活量、 $P_{\text{CO}_2}$ は二酸化炭素ガス分圧、 $z_c$ 、 $m_c$ は陽イオンの電荷及び濃度、 $z_a$ 、 $m_a$ は陰イオンの電荷及び濃度を表わす。

図3.1.6は、上式により算出したpH、及び $\text{HCO}_3^-$ の増大過程である。図中の点線は、それぞれの $\text{CO}_2$ ガス分圧に対応する経路を表している。これらの経路は、図中①の線に相当する雨水への $\text{CO}_2$ ガスの溶解平衡の状態を始点とし、方解石(②)、もしくはドロマイト(③)の飽和溶解に対応する状態にまで到る。図3.1.6は、温度15°Cにおける計算結果であり、その溶解度は、温度条件、イオン強度により異なる。（低温の場合、炭酸塩鉱物の溶解度は上昇する。）

土壤中を浸透する水は、炭酸塩鉱物の飽和溶解に対応する状態にまで変化するが、さらに、これらの鉱物と非平衡な状態に変化する例もある。この様な例としては、浸透水が、 $\text{CO}_2$ ガス分圧の高い土壤中で炭酸塩鉱物を飽和レベルにまで溶解し、その後、 $\text{CO}_2$ ガス分圧の低い深部に移動することによる非平衡状態の出現がある。この場合には、土壤の深度が増すにつれ、地下水中的 $\text{CO}_2$ ガスが脱ガスされる。この反応に比して鉱物の

溶解速度が小さいために、pHが上昇して過飽和の状態となる。地下水を飽和させるために必要な炭酸塩鉱物は、一般に微量である。例えば、CO<sub>2</sub> ガス分圧10<sup>-1</sup>bar の土壤中では、方解石の溶解により 6.3 m mol / l のCa<sup>2+</sup>が溶出する。これに対応する方解石の質量は、浸透水 1 l に対して 0.63 g となる。これは、土壤の空隙率0.33、比重を2.65とすると土壤中の含有率0.01%に対応する。

### (2) 閉鎖系での炭酸塩鉱物の溶解

不飽和土壤中を通過してCO<sub>2</sub> ガスを吸収した浸透水が、有意な量のH<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> を消費することなく飽和域に流入する場合、飽和域での炭酸塩鉱物の溶解、即ち、閉鎖系での溶解が生ずる。閉鎖系においては、H<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> がHCO<sub>3</sub><sup>-</sup> に変換されると、H<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> 濃度とCO<sub>2</sub> ガス分圧が減少することとなる。これは、炭酸塩岩や、多くの石灰質層においては、地下水盆地以深でのCO<sub>2</sub> の補充はなされないためである。図3.1.6の(b) は、閉鎖系での炭酸塩鉱物の溶解に伴う、pH、HCO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度の変化を示す。図3.1.6の(a) 及び(b) の比較から明らかなように、初期のCO<sub>2</sub> 分圧が小さい程、開放系と閉鎖系での溶解の差は大きくなる。

### (3) 方解石及びドロマイトの不調和な溶解

(1) 及び(2)の議論においては、方解石とドロマイトの溶解は相互に独立に生ずることを仮定していた。しかし、実際には、以下の様に方解石-ドロマイト系の溶解は相互に関連し、不調和なものとなる。

- 1) 地下水がドロマイトを溶解した後に方解石に接触する場合、方解石及びドロマイトの溶解平衡は、次式で表される。

$$\begin{aligned} K(\text{方解石}) &= [Ca^{2+}] [CO_3^{2-}] \\ K(\text{ドロマイト}) &= [Ca^{2+}] [Mg^{2+}] [CO_3^{2-}]^2 \end{aligned}$$

活量積 [Ca<sup>2+</sup>] [CO<sub>3</sub><sup>2-</sup>] は、K(ドロマイト)<sup>1/2</sup> であり、温度10°Cにおいて、K(ドロマイト)<sup>1/2</sup> = K(方解石) となる。そこで、系の温度が10°C以上と10°C以下の場合とで次の様に系の挙動は異なる。

#### ① 温度が10°C以上の場合（ドロマイトの不調和な溶解）

この場合には、K(ドロマイト)<sup>1/2</sup> < K(方解石) であり、ドロマイトが飽和まで溶解した後にも、なお、方解石が溶解し得る。方解石の溶解は、Ca<sup>2+</sup> と CO<sub>3</sub><sup>2-</sup> の活

量を増加し、このためドロマイトに対して過飽和となる。ドロマイトの沈殿反応は緩やかなものであるため、この過飽和な状態は長期的に継続することとなる。

#### ② 温度が10°C以下の場合（方解石の不調和な溶解）

この場合には、 $K(\text{ドロマイト})^{1/2} > K(\text{方解石})$  であり、ドロマイトを飽和まで溶解した地下水は方解石に対して過飽和となる。このため、系の状態は、ドロマイトの溶解速度と方解石の沈殿速度とが均衡するまで変化することとなる。

#### 2) 地下水が、方解石を溶解した後にドロマイトに接触する場合（ドロマイトの不調和な溶解）

方解石を溶解した地下水がドロマイトと接触する場合には、 $[Mg^{2+}]$  の非平衡のために、温度に依らずドロマイトの溶解が生ずる。ドロマイトは、方解石が沈殿し続ける限り溶解し、このため、地下水中の  $Ca^{2+} / Mg^{2+}$  比は減少する。

#### 3) 方解石とドロマイトが同時に溶解する場合

氷河性の礫岩層や、部分的にドロマイト化した石灰岩においては、方解石とドロマイトが共存し、このため、これらの鉱物が同時に溶解する。この際、方解石とドロマイトの溶解速度の差が、 $Ca^{2+} / Mg^{2+}$  比を決定することとなる。

一般的には方解石の溶解速度がドロマイトのそれよりも大きく、先ず、方解石が地下水に対して飽和となり、その後、ドロマイトの不調和な溶解が継続する。この場合、初期の  $Ca^{2+} / Mg^{2+}$  比は大きく、除々に小さい値へと変化する。

しかし、ドロマイトが方解石に比べて多く存在し、従って、反応に有効な表面積が大きく、ドロマイトの溶解速度が方解石のそれを上回る場合には、ドロマイトに対して飽和した地下水への方解石の溶解はほとんどない。

以上に示した様に、閉鎖および開放系での炭酸塩鉱物の溶解はそれぞれ異なるが、それに加えてさらに、方解石及びドロマイトの共存の状態によっても異なり、実際の系における幅広い  $Ca^{2+} / Mg^{2+}$  比は、(1)及び(2)に示した単純なモデルでは表現されないことがある。また、陽イオン交換反応によっても、 $Ca^{2+} / Mg^{2+}$  比の変化が生じ得る。

#### (4) その他の因子

##### 1) 溫 度

炭酸塩鉱物は、他の多くの鉱物と反対に、二酸化炭素分圧一定の時に温度と溶解度との間に負の相関を有する。即ち、低温において炭酸塩鉱物の溶解度はより大きな値を示す。従って、炭酸塩岩の領域に流入する水は、地表近くの低温域で方解石、ドロマイトを溶解して、深部の高温域でこれらの鉱物を沈殿するという挙動を示すことに

なる。

## 2) 他の鉱物

他の鉱物の溶解により地下水中の $\text{Na}^+$ ,  $\text{K}^+$ ,  $\text{Cl}^-$ ,  $\text{SO}_4^{2-}$ 等のイオン濃度が上昇する場合、地下水のイオン強度が増大して主要イオンの活量が低下することにより、方解石やドロマイドの飽和濃度が増大する。

### 3.1.6 各地層中における地下水の変遷

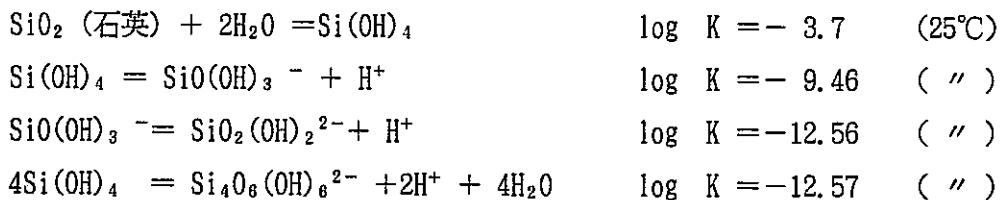
ここでは、前節までに述べてきた地下水の水質形成に関する一般的プロセスを踏まえて、結晶質岩系および堆積岩系の地下水の変遷について概説する。

#### (1) 結晶質岩系での地下水の変遷

火成岩や変成岩等の結晶質岩は、一般に、石英、長石や雲母等のアルミニノケイ酸塩鉱物を相当量含んでいる。これらの鉱物は、現在の地表近傍に比してはるかに高温、高圧の条件下で生成されたものであるため、地下数百メートル、もしくは数千メートルの深部においても熱力学的に不安定であり、地下水と接触した場合には溶解する傾向がある。これらの鉱物の溶解により、地下水成分の濃度の増大と、岩石中の鉱物学的变化とともにたらされる。長石や雲母、及びその他のケイ酸塩鉱物の溶解は、地下水中に含まれる溶存 $\text{CO}_2$ に強く影響される。TDS が低く、溶存 $\text{CO}_2$ を含む地下水が陽イオン、アルミニウム及びシリカに富むケイ酸塩鉱物と接した場合、陽イオンとシリカの浸出が生じ、 $\text{Al}/\text{Si}$  比の高いアルミニノケイ酸塩の残滓を形成する。これらの残滓は通常、カオリナイト、イライトもしくはモンモリロナイトといった粘土鉱物である。また、地下水に浸出する陽イオンは、普通、 $\text{Na}^+$ ,  $\text{K}^+$ ,  $\text{Mg}^{2+}$ 及び $\text{Ca}^{2+}$ である。ケイ酸塩鉱物の溶解によるもう一つの重要な帰結は、pHと $\text{HCO}_3^-$ 濃度の上昇である。

以上の過程を平衡論的に考察してみると以下のようになる。

結晶質岩中に最も多く含まれる鉱物は石英( $\text{SiO}_2$ )であり、石英の溶解についての平衡は Stumm and Morgan(1981) によって明らかにされている。



溶解により生ずる、ケイ素を含む上記の化学種は、 $H_2SiO_4^{2-}$ 、もしくは $H_3SiO_4^-$ といった酸の形式で表すことも可能である。上式は、以下の様な、石英の溶解のpH依存性を同時に示すものである。

### ① 通常の地下水中で見られるpH範囲 (pH 6~9)

この領域では、上記のうち第一式の反応が支配的となり、従ってケイ酸は $Si(OH)_4$ の形で溶解する。

### ② ①よりもpHの高い範囲

この領域では、上記の第二式以降の反応が支配的となり、石英の溶解度は増大する。石英の溶解度は、通常、25°Cにおいて $6\text{ mg/l}$ 程度であり、これに対してアモルファスシリカは地下水中での $SiO_2$ 濃度を $115 \sim 140\text{ mg/l}$ という高い溶解度で支配することとなる。結晶質岩中に含まれる石英が多量であること、及びアモルファスシリカの溶解度が高いことから、地下水中の主要成分が $SiO_2$ となることが予想されるが、実際は、地下水中の $SiO_2$ 濃度は $10 \sim 30\text{ mg/l}$ にあり、アモルファスシリカに対して不飽和となっている。実際に、地下水中の $SiO_2$ の供給源となっているのは石英やアモルファスシリカではなく、長石や雲母等のアルミノケイ酸塩である。風化した火成岩、もしくは变成岩の鉱物学的、もしくは化学的特性に関する研究から、長石鉱物が粘土鉱物等に変化することが明らかとなっている。表3.1.4に、この変化に関与する主要な反応をまとめた。表3.1.4に示される反応のうち、支配的なものが明らかとなれば、関連する化学種の間の関係を定量的に把握することが可能である。例えばアルバイトがカオリナイトに変化する反応が支配的となる場合、質量作用式は、

$$K(alb-kaol) = [Na^+] [Si(OH)_4]^2 / [H^+]$$

となり、 $Na^+$ 及び $Si(OH)_4$ の活量とpHとの関係は次式で表されることとなる。

$$\log K(alb-kaol) = \log [Na^+] + 2\log [Si(OH)_4] + pH$$

また、同様にカオリナイト-Naモンモリロナイトの反応、及びギブス石-カオリナイトの反応も、 $Na^+$ 、 $Si(OH)_4$ 、及びpHによって表すことができる。

この様な定式化に基づき、図3.1.7に示す様な安定線図を作成することが可能であり、この図は、アルミノケイ酸塩と共存する地下水組成の理解に有効である。表3.1.4から、長石、雲母、及び粘土鉱物の溶解が $H^+$ を消費するものであることは明らかである。

土壤中やその他の不飽和層においては、 $\text{CO}_2$ ガスの分圧が一定に保たれ、この $\text{CO}_2$ ガスの溶解によって $\text{H}^+$ が補充されるが、飽和層中においては、 $\text{H}^+$ が補充されないため、地下水のpHは上昇することとなる。

以上のような考察に基づき、降水の様に弱酸性の淡水が、長石（例えばアルバイト等）を主要な溶解成分とする岩体中に浸透する際の化学組成変化は次の様なものとなる。

- ① 溶解の初期には、 $\text{Si(OH)}_4$ 、 $\text{Na}^+$ の濃度は低く、地下水はギブス石の安定領域にあるため、アルバイトはギブス石を生成する様な不調和溶解を生ずる。
- ② さらに反応が進むと $\text{Si(OH)}_4$ 濃度、及び $[\text{Na}^+]/[\text{H}^+]$ 比は上昇し、地下水はギブス石の安定領域からカオリナイトの安定領域へと変化し、このためカオリナイトを生成する様な不調和なアルバイトの溶解が生ずる。
- ③ さらに反応が進むと、地下水は $\text{Na}$ モンモリロナイトの安定領域へ、さらにはアルバイトの安定領域へと変化し、この段階に到って地下水は岩体中の主要な溶解成分と平衡となる。  
この様に、地下水は、①～③を通じて一つ以上の鉱物と平衡もしくはそれに近い組成を有することとなる。

以上の検討は、平衡論に基づくものであるが、実際には速度論的観点からの検討も必要であろう。

反応速度については実験室における研究が有効であり、静的、及び動的系での長石や雲母の溶解試験がこれまでに行われている（静的系での実験例；Garrels and Howard, 1957; Wollast, 1967; Houston, 1972／動的系での試験例；Bricker, 1967; Bricker et al., 1968; Deju, 1971）。いずれの方法による実験でも、長石及び雲母の溶解には次の二つの段階があることが示されている。

#### ① 第一段階

接液後、数分のうちに、まず、鉱物表面の陽イオンが液中の $\text{H}^+$ イオンと置換される。さらに、数時間から数日のうちに初期調和溶解が生じ、液相中の主要成分の大部分が供給される。

#### ② 第二段階

極めて緩やかな不調和な溶解が生ずる段階。種々のケイ酸塩鉱物の溶解による $\text{SiO}_2$ 濃度の経時変化例を、図3.1.8に例示する。

## (2)堆積岩系での地下水の変遷

堆積岩系においては、堆積岩、火成岩及び変成岩を起源とする多岐にわたる鉱物の混合が見られることが多く、従って鉱物の組成の幅広い変動が認められる。この鉱物組成の変動は、共存する地下水の化学特性に影響を及ぼすと考えられる。従って、堆積岩系における地下水の変遷について最も重要と考えられる因子の1つは、地下水が種々の地層と反応する順序である。これに関して、Freeze and Cherry (1979)によれば以下のように二つの順序を想定し、これに従った地下水組成の変化を計算した例を示している。

## 1) 表層の土壤 - 石灰岩 - 石コウ - 砂岩 - 頁岩の順序

## ① 土壤と地下水との反応

石灰岩系の帶水層から生成した土壤中において、有機物の酸化により $10^{-2}$  bar程度に上昇したCO<sub>2</sub>ガス分圧に対応する気液平衡が達成される。ここで、計算上は、他のプロセスは無視し、H<sup>+</sup>はHCO<sub>3</sub><sup>-</sup>と電気的にバランスするという前提に基づきpHは推定される。

## ② 石灰岩と地下水との反応

石灰岩中では、開放系での方解石の溶解が飽和に到るまで進行し、これに伴いHCO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度とpHが上昇する。

## ③ 石コウと地下水との反応

次に、地下水は石コウと接し、飽和濃度に到るまで石コウの溶解が進行する。このため、地下水中の主要なイオンは、Ca<sup>2+</sup>とSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>となる。（方解石で飽和になった地下水が更に石コウと平衡になると、方解石に対して過飽和になる。）

## ④ 砂岩中での地下水の変遷

砂岩は、主として石英と長石類とから成り、これらの鉱物が地下水組成に関与しないとすると、この岩石中で方解石に対する過飽和が解消され、平衡が成立する。この反応により、pHが低下する。

## ⑤ 頁岩と地下水との反応

頁岩の主要成分の一つにNaモンモリロナイトがあり、陽イオン交換反応によりCa<sup>2+</sup>がNa<sup>+</sup>イオンに置換される。このため、地下水中の主要な陽イオンはNa<sup>+</sup>となる。

上記の順序に従い反応が進行する場合、各地層での地下水組成の計算値は表3.1.5に示す様に変化することとなる。

## 2) 土壤 - 砂岩 - 貞岩 - 石灰岩 - 石コウの順序

(1)の順序の場合との主な相異は次の点である。

- ・貞岩層に浸入する地下水は、砂岩中の長石類の溶解により微量の $\text{Na}^+$ と $\text{Ca}^{2+}$ を含むのみであり、このため、貞岩中のナモンモリロナイトの陽イオン交換は地下水組成に大きな影響を及ぼさない。
- ・石灰岩との反応は、この場合、閉鎖系での方解石の溶解として生ずることとなり、このため、pHの上昇が(1)の例に比して顕著となる。

この場合の計算結果を表3.1.6に示す。

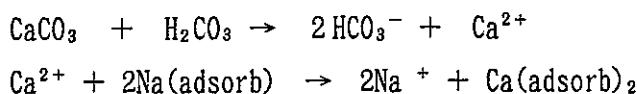
表3.1.5及び表3.1.6を比較すれば、地層との反応の順序によって地下水の組成が明らかに異なることがわかる。

以下ではよくみられる層状堆積岩について地下水の変遷について考察を行う。

層状堆積岩は、通常、砂岩、シルト岩、貞岩、石灰岩等を含むものであり、炭酸塩鉱物の溶解等これまで述べてきた代表的プロセスが重要ではあるが、これに加えて、以下のプロセスがより重要な因子となる。

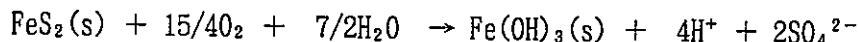
- ① 陽イオン交換
- ② 土壌域より深部での $\text{CO}_2$ の発生
- ③  $\text{SO}_4^{2-}$ の生化学的還元
- ④ 硫化鉱物の酸化

層状堆積岩における地下水組成の顕著な特徴は、 $\text{Na}^+$ と $\text{HCO}_3^-$ とが主要なイオンとなり、 $\text{HCO}_3^-$ は2,500mg/l以上にまで到るという点である。 $\text{Na}-\text{HCO}_3$ 型の地下水は、第三紀及び白亜紀の層状堆積岩に見られる。この様に高い $\text{Na}^+$ 、 $\text{HCO}_3^-$ 濃度は交換性陽イオンとして $\text{Na}^+$ を含む粘土鉱物の陽イオン交換と方解石もしくはドロマイドの溶解との複合的効果として説明される。この効果は、次の二つの反応が相互に影響しつつ継続的に進行することによりもたらされる。

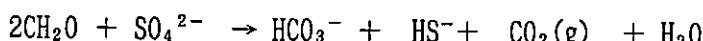


すなわち、溶出した $\text{Ca}^{2+}$ は $\text{Na}^+$ と交換され粘土鉱物に吸着することにより、反応が進行しても $\text{Ca}^{2+}$ 濃度は低く保たれる。このため、方解石の溶解は継続し、結果として $\text{Na}^+$ と $\text{HCO}_3^-$ 濃度の上昇がもたらされる。また、上式の方解石の溶解は閉鎖系でのものであり、 $\text{H}_2\text{CO}_3$ の形で初期に存在していた溶存 $\text{CO}_2$ は消費され、pH、 $\text{HCO}_3^-$ 及び $\text{Na}^+$ 濃度の上昇を

もたらす。第三紀及び白亜紀の堆積岩中においては、数十mg/l の  $\text{Ca}^{2+}$  及び  $\text{Mg}^{2+}$  濃度で、 $\text{HCO}_3^-$  濃度が 1,000mg/l 以上であり、pHとして 7.0~8.5 を示す地下水が一般的である。この様に、高い  $\text{HCO}_3^-$  濃度にもかかわらず pH が弱アルカリ性~中性領域にとどまるのは、この様な堆積岩系では、土壌からの  $\text{CO}_2$  の供給に伴う  $\text{H}^+$  の発生に加えて、黄鉄鉱の酸化による  $\text{H}^+$  の供給があるためである。



また、上述した、方解石の溶解による  $\text{HCO}_3^-$  濃度の上昇に加えて、 $\text{SO}_4^{2-}$  による有機物の酸化に伴い発生する  $\text{CO}_2$  ガスにより  $\text{HCO}_3^-$  がもたらされる場合がある。



この場合には、地下水中の  $\text{SO}_4^{2-}$  濃度が低いことと、 $\text{H}_2\text{S}$  ガスの臭いが特徴となり、方解石起源の  $\text{HCO}_3^-$  を有する地下水との区別は容易である。

一方堆積岩について考慮しておかねばならないもう 1 つの重要な点は、深部の堆積岩中では、海水に近い組成の地下水が、しばしば見られることである。これらの地下水は、堆積岩の形成に際して、海水が空隙中に閉じ込められたものが起源であり (Hitchon et al., 1971)，その大部分は降水起源の地下水に置換されているが、membrane filtration により溶存イオンがその場にとどまったために高いイオン強度を示す。membrane filtration とは高圧縮された粘土鉱物の重なり合った Clay Layer が半透膜状に作用すること (図 3.1.9) であり、このため、地下水の置換にもかかわらず、溶存イオンが滞留する現象である。深部堆積岩中の地下水と海水との主要な相異は、前者が後者に比してやや高い  $\text{Na}^+$ ， $\text{Cl}^-$  濃度を示すことと、 $\text{Ca}^{2+}$  濃度が高く  $\text{Mg}^{2+}$  及び  $\text{SO}_4^{2-}$  濃度が低いことである。高い  $\text{Ca}^{2+}$  濃度と低い  $\text{Mg}^{2+}$  濃度とは、本来存在していた方解石が、ドロマイトを生成する不調和な溶解を生ずることに起因しており、低い  $\text{SO}_4^{2-}$  濃度は上に述べた有機物の酸化に伴う  $\text{SO}_4^{2-}$  の消費によると考えられている。

以上の諸プロセスを地下水化学特性への影響との関連において、表 3.1.7 a~d に整理する。

### 3.2 我が国の地下水の水質形成に関する化学的環境条件

本節においては、地下水の地球化学的特性を規定する主要因である土壤、岩石及びその風化並びに岩石を構成する鉱物種について我が国における特徴の概要と、地下水組成データを含めて我が国における地下水化学の研究についての概要を、前節で概観した地下水水質の形成に関する一般的プロセスを踏まえて以下に説明する。

#### 3.2.1 土 壤

土壤は地表に露出した岩石が機械的に粉碎され、化学的に分解されて生じた物質であると一般には考えられている。しかし、この過程から想像されるような無機物の集合体ではなく、そこにさらに有機物が加わった複雑な混合物である（一國、1989）。また、土壤学の立場からは、「土壤は地表部における気候・生物・母材・地形の自然環境因子と人間活動および時間的因素の影響のもとで、岩石の風化物である無機物質と動植物・微生物の遺体およびその分解物である有機物質の相互作用によって垂直方向に分化した物理的、化学的、生物的に異なる土層の集合した体制をいい、高等植物の根の生育を支持できる部位をいう。」（松本、1989）と定義されている。

土壤学では、通常土層を上位からA、B、C層などと呼び、各層はさらに細分されている。松本（1989）によれば、A、B、C層は次のように特徴づけられている。A層は表面に近接した層で、気候、動植物・微生物などの作用を最も強く受ける部位である。有機物の集積により、他の層より黒みが強く、植物根により下層から吸い上げられた成分が加わる一方で、降雨、灌漑によって水が土壤中を下降するとき、土壤中の諸物質を溶解し、下層に移動させる溶脱過程も含まれている。B層はA層の直下にあって、A層から何らかの影響を受けている部位で、A層から移動してきた粘土、有機物、鉄、塩基類が集積している場合が多い。C層は土壤の母材になる層で、岩石の風化した微小な物質から成り、A層からの影響はあまり受けていない土層のことである。また、森林などで有機物の著しく多い層ができる場合にはそれをO層と呼んでいる。

Simonson(1959)は、土壤生成に作用する過程を次の4つのカテゴリーに分類している。すなわち、①物質の土壤への付加によるもの、②物質が土壤から除去されることによるもの、③土壤中の物質がある層から他の層へと移動することによって起こるもの、④土壤中の物質変化によるものである。これらの生成作用の主なものとしては、溶脱作用・集積作用・洗脱作用・ポドゾル化作用・ラテライト化作用・塩類集積作用・アルカリ化作用などがある。

松本(1989)は土壤の分類と分布および水との化学的相互作用について以下のように述べている。

気候、有機物、地形、母材、時間などの外部的環境と上記の内部的生成作用とから土層内に特徴的な形態や性質をもった類似の土壤が地域を異にして分布する。そのような土壤の最高位の分類が土壤型であり、世界的に、ポドゾル、褐色森林土、赤黄色土、泥炭土などが識別されている。このような土壤の種類の中で水の影響を受けた土壤は、地下水の還元過程を概観する上で重要である。適当量の易分解性有機物を含む土壤を冠水状態にし保温静置すると、土壤の還元状態が発達して土色が青灰色に変化するように、自然界にも、通年土壤が水で飽和されているような環境下にある土壤には、グライ土と呼ばれる還元状態の発達した土壤が存在する。また、地表に水が常に停滞した状態になると湿地植物が繁茂し、その遺体が水中に堆積すると、堆積速度のほうが微生物による分解よりはるかに大きいため堆積量が増加して厚い有機物層だけの層となる泥炭土となる。泥炭土は、微生物活性の低い冷涼地帯だけでなく、熱帯地域にも分布する。泥炭土の有機物分解が進むと黒泥土となる。

日本の土壤型は世界の土壤型に登場してきた亜寒帯地域から亜熱帯地域に分布する土壤型だけではなく、火山灰の影響を受けた土壤も広く分布している。我が国の土壤型の地理的分布は図3.2.1に示す通りである（松本, 1989）。これら土壤の分布から我が国においては図3.1.1に示された土壤中の重要な反応はほぼ地域によらず期待できると考える。

### 3.2.2 岩石

#### 3.2.2.1 岩石の分類

地球上に存在する岩石はその成因から見ると、火成岩・堆積岩・変成岩の3種に大別される。火成岩はマグマが固結してできた岩石のことであり、堆積岩は水中又は空气中での堆積作用によってできた岩石である。変成岩とは変成作用によってできた岩石、すなわちもとの岩石が地下の深い所で変化してできた岩石のことである。我が国でもこれら3種類の岩石は広く認められる。

マグマが固結してできた岩石である火成岩は、構成鉱物および組織の双方における相異によって細かく区分される（都城・久城, 1975）（表3.2.1）。高温の液体物質であるマグマが地下深部で徐々に冷え固まると、結晶が晶出し、最終的には全て結晶の集合体で形成された岩石になる。カコウ岩がこの代表的な岩石である。一方マグマが火山などで火口から溶岩となって地表に流れ出すと、高温であるマグマは急冷され、液体部分は結晶化することができず、ガラス質の岩石となる。その中には、一部既に結晶化していた鉱物が斑晶としてガラス質の基質の中に含まれることもある。安山岩や玄武岩がこの代表的な岩石である。また、マグマが地表へ噴出はしないが、地下の浅所や火口付近

で冷え固まった岩石もあり、ドレライトなどがその例である。

堆積岩は大きく碎屑性堆積岩と化学的=生物的堆積岩に分けられる（都城・久城、1975）（表3.2.2）。前者は他の既存の岩石に含まれていた鉱物や鉱物集合が固体の粒子として運ばれ、別の場所で堆積してできた堆積岩のことである。これは粒度によって粗粒から細粒のものへ礫岩、砂岩、泥岩などに細分される。後者は堆積物が堆積した場所で、化学的、生物学的に別の岩石として沈殿、堆積してできた堆積岩で、炭酸塩を主とする石灰岩、シリカ質のチャートなどがこれに区分される。堆積岩は水中などで、堆積物が次々と重なり、その後固結してできた岩石であり、その堆積物が堆積岩になるプロセスの進行（続成作用）に伴って岩石強度などの増大といった岩石の諸性質の変化がおこる（小島、1979）。

火成岩や堆積岩（さらに変成岩自体）が変成作用を受けてできた岩石である変成岩は、化学組成と変成度とその組織の面から分類されている。化学組成は変成作用を受ける前の岩石（原岩という）の化学組成がどういうものであったかによって決まる（ある岩石が変成作用を受けて変成岩になっても、その岩石全体の化学組成はあまり変化しない場合が多い）。変成度はその変成作用がどういう温度、圧力条件下で起こったかによって決定される（地下深所では温度、圧力が共に高い）。岩石の組織は、その岩石が受けた応力、変成度、構成鉱物によって支配され、片岩、片麻岩のような岩型に区分される。我が国の変成岩は、都城・久城（1975）によると、その起源すなわち全岩の化学組成に基づいて、石英長石質、泥質、石灰（岩）質、塩基質の4種に分類される。石英長石質は $\text{SiO}_2$ に富み、逆に塩基質は $\text{SiO}_2$ に乏しい。泥質は、 $\text{K}_2\text{O}$ 、 $\text{Al}_2\text{O}_3$ に富み、石灰（岩）質は、 $\text{CaCO}_3$ が非常に多い。

変成作用とは岩石が地下深所において十分な時間、高温、高圧条件下におかれ、本質的に固体のままで鉱物組成や組織の変化、新しい結晶の形成（再結晶化）等を起こすことである。従って、ごく細粒の粒子から成る堆積岩である泥岩や地表に噴出しガラス等の部分から主としてなる火山岩なども変成されると結晶粒の大小はあるが、深成岩のような結晶質な岩石になる。

以上述べたように、火成岩と変成岩は結晶質岩としての地球化学的取扱が可能となると考えられる。

### 3.2.2.2 我が国における岩石の分布

岩石の生成の時代を考慮してその概略的な分布を示すと以下のようにまとめられる。

#### (1)結晶質岩

##### 1)カコウ岩類

我が国に分布するカコウ岩類は、ジュラ紀以前のもの、白亜紀～古第三紀のもの、新第三紀のものに大別される。ジュラ紀以前のカコウ岩類としては、飛騨地方に分布するのみである。白亜紀～古第三紀のカコウ岩類は、西南日本外帯を除く日本の各地に分布しており、その面積は日本のカコウ岩類の全分布面積の60%を占める（諏訪ほか、1989）。新第三紀のカコウ岩類は西南日本の非グリーンタフ地域と東北日本のグリーンタフ地域に分布している。

##### 2)ハンレイ岩類

ハンレイ岩類は西南日本内帯と北日本の日高山地に主に比較的まとまった分布を示している。しかし、それにおいても一つ一つの岩体の規模は小さい。

##### 3)流紋岩類

我が国に分布する流紋岩類は新第三紀より前（主に白亜紀）と新第三紀のものに大別される。白亜紀の流紋岩類は、西南日本内帯の北九州から羽越地域にかけて広く分布する。新第三紀の流紋岩類は、グリーンタフ地域のものと西南日本非グリーンタフ地域の酸性貫入岩に伴われるものに区分される。

##### 4)安山岩・玄武岩

安山岩、玄武岩は、新第三紀より前のものと新第三紀のものに分けられる。前者は中国山地、秩父帯、北海道日高・佐呂間地域などに小規模に分布する。後者は、東北日本からフォッサマグナ地域さらに山陰から北九州にかけて起こった新第三紀のグリーンタフ変動の初期～中期に大規模に噴出したものであり、全体の大半を占める。また、南九州や北海道の非グリーンタフ地域にも分布が認められる。

##### 5)結晶片岩類

広域の变成帯としては西南日本に分布する三波川帯、領家帯、三郡变成帯、飛騨变成帯、西彼杵帯などが代表的である。北日本では分布規模の小さな御斎所、母体、神居古潭などの变成帯（岩）がある。

#### (2)堆積岩

##### 1)新第三紀の堆積岩

新第三紀の堆積岩は糸魚川～静岡構造線を境として東北日本にその分布が広く、グリーンタフ、非グリーンタフ地域のいずれにも層厚の堆積岩が露出している。一

方、西南日本では、独立した堆積盆の中に小規模な分布を示しているのが特徴である。

### 2)新第三紀より前の堆積岩

新第三紀より前の堆積岩は、西南日本においては顕著な帯状分布をなし、中・古生代の堆積岩については西南日本外帯（秩父帯・四万十帯北帯）と内帯（中国帯など）に分布している。北日本においては北上山地から北海道中軸部に至る地域に分布している。古第三紀の堆積岩は西南日本外帯（四万十帯南帯）、内帯（北九州など）および北日本（常磐炭田、石狩炭田など）に分布している。

### 3)石灰岩

石灰岩の分布は西南日本内帯（秋吉など）や北日本の安家地域などに主に認められる。

#### 3.2.2.3 岩石の風化

##### (1) 風化作用

岩石が地表水や地下水と反応する作用としては、風化作用、埋没統成作用、変質作用などが挙げられる。地表付近に存在する岩石が通常受ける風化作用について、一國（1989）の考えに基づけば、以下のようにまとめられる。

地表の岩石が主に機械的、化学的作用を受けて細粉化される過程が風化である。その他、生物の働きによる風化もある。風化は機械的風化と化学的風化とに区別されるが、多くの場合、これらの風化は同時に進行する。機械的風化は温度変化による岩石の膨張と収縮、岩石のき裂中の水の凍結、岩盤上を移動する氷河による切削などによって起こる岩石の粉碎の過程を指す。化学的風化は岩石の化学的変化のことであって、岩石が水、二酸化炭素などの作用によって地表条件下で安定な物質に変化する過程である。

化学的風化の速度は温度と反応の媒体となる水の供給のされ方に依存する。化学的風化は水和、加水分解、溶解、酸化などの反応に分けて記述することができる。風化に伴って起こる反応は、風化残留物あるいは風化帯から流出する水の化学組成から推定することができる。岩石が化学的風化を受けたときの元素の溶出の難易を測る尺度が移動度であり、それはCa、Na、K、Mg、Siの順に減少する。

風化に対する火成岩中の鉱物の安定性は石英が一番高く、白雲母、カリウム長石、黒雲母、角閃石、普通輝石、シソ輝石、カンラン石の順に低くなる。また、カルシウム質斜長石はカンラン石と同様に安定性が低く、ナトリウム質斜長石は風化に対する

抵抗性が以上の造岩鉱物に比べて大きい。これらは、Si-O結合の数やSiをAlが置換する程度などによって説明されている。

## (2) 風化型と風化殻

風化の型と我が国における特徴的な分布は以下の通りまとめられる（歌田，1979）。

地球表面で起こっている、またはかつて起こった風化は氷河気候型（A型）、乾燥気候型（B型）、湿潤気候型（造構運動の弱い地域、C<sub>1</sub>型；造構運動の活発な地域、C<sub>2</sub>型）の三つに大きく分けられる。化学的風化が典型的に進むのは湿潤気候地域であるが、そこでも地形が急峻で造構運動が活発なところでは、風化の速度に比べて侵食の速度が大きいため厚い風化殻は生じない。最も厚い風化殻を生じるのはC<sub>1</sub>型で、ときにその厚さは100mに達することがある。

C<sub>1</sub>型の典型的な風化殻としては、ボーキサイト・ラテライトカオリナイト型風化殻（BL-K型）、カオリナイト-モンモリロナイト型風化殻（K-M型）、パラゴナイト-沸石型風化殻（P-Z型）を挙げることができる。

我が国の現在の地表に見られる風化殻としては、火碎岩起源のK-M型風化殻がもっとも普遍的であり、火山ガラスの変質速度が速いため造構運動の激しい地域でも比較的厚く発達する。また、我が国においては、ラテライト型風化殻として地質時代のものがいくつか報告されている。

中部瀬戸地方にはカコウ岩を起源とし、鮮新世～更新世にかけて形成された典型的なK-M型風化殻（カオリン鉱床）が存在する。そこにおいては風化カコウ岩（マサ）は未風化のカコウ岩に漸移する。マサの構成鉱物は長石と黒雲母から変化したカオリン鉱物と少量のバーミキュライト、変化しないで残った石英、カリ長石などで、上部ほどカオリン鉱物の量が多く下部に向かってその量は減少している。そこでの風化系列は長石→アロフェン→ハロイサイト→カオリナイト、および黒雲母→Alバーミキュライト→カオリナイトであるが、雲母型粘土鉱物や混合層粘土鉱物が見出されることもある。

低シリカ岩で、FeやMgを多く含む原岩の場合、FeやMgに富む鉱物は地表条件で緑泥石やバーミキュライトの中間段階を経て容易にモンモリロナイトに変化する。その後の変化はモンモリロナイト→H<sup>+</sup>-モンモリロナイト→モンモリロナイト／ハロイサイト混合層→ハロイサイト→カオリナイトの順に生成する。しかし天然では中間のモンモリロナイトのステージが広くみられる。

BL-K型、K-M型、P-Z型の風化殻の特徴を溶脱帯と集積帯に分けて表3.2.3に示す。

一方、徳山（1983）は、兵庫県中南部の東播地域に分布する大阪層群とその下位の

神戸層群に認められる風化殻を研究して、古期深層風化の風化殻の構成鉱物についての階層構造を上位から下位にかけ、次のようにまとめた。

- ① 溶脱礫のギブス石
- ② 沈殿性ギブス石+溶脱礫のハロイサイト
- ③ 沈殿性ハロイサイト+鬼板+溶脱性モンモリロナイト
- ④ 沈殿性モンモリロナイト+未風化礫
- ⑤ 沈殿性モンモリロナイト、オパール+未風化礫

この分類からは、単純な「溶脱層」と「集積層」は区分しがたいものの、ハロイサイトを含む層（又は溶脱礫を含む層）を溶脱層（I）、モンモリロナイト層の下底までを置換・集積層（II）として、新鮮岩盤（III）から区別すると、観察された特徴的な地形とよく符合することを示している。

厚い風化殻は、西日本、中部、東北地方のカコウ岩地域、西南日本外帯や内帯の中古生界の砂岩、頁岩等の堆積岩及び東北地方の新第三系のいわゆるグリーンタフ地域に認められるが、現在見られる「深層風化帶」は中新世～鮮新世の高温多湿気候の所産であり、現在の気候条件では風化による変質作用は、ほとんど進行していないと思われるとしている。

### 3.2.2.4 岩石中の鉱物種

鉱物と鉱物でないものの境界は必ずしも明確ではないが（森本ほか、1975），鉱物の定義を“一定の化学式で表されるほぼ均質な物質”とすることにそれ程大きな無理はない。岩石とは鉱物から構成される物質であるため、このことは鉱物を岩石から区別する上で大きな特徴となっている。

地球の内部は中心部から核・マントル・地殻から構成される。我々が手にとってみることのできる岩石はふつう地殻に属する。普通岩石は成因上から火成岩と変成岩と堆積岩の3つに区分される。地殻において、火成岩の総量に較べると堆積岩・変成岩の量は少なく、又両者の平均的な化学組成は大きな差を持たないため、地殻の化学組成は事実上火成岩の平均組成に等しい（Mason, 1966）。その化学組成を表3.2.4 a, 表3.2.4 bに示す。これからO, Si, Al, Fe, Ca, Na, K, Mg の8種の元素が全体の99%を占めていることがわかる。つまり地殻は本質的に酸素が詰め込まれ、ケイ素や他の金属イオンがそれをのりづけしているのである（Mason, 1966）。地殻中の岩石を構成する鉱物はAl, Fe, Ca, Na, K, Mg を含むケイ酸塩鉱物が大部分を占める。我々がよく耳にする石英や長石・輝石などはそのようなケイ酸塩鉱物である。

地球上に存在する鉱物の種類は多いが、岩石を構成する出現頻度の高い鉱物の数は限

られており、それらは造岩鉱物と呼ばれる。造岩鉱物はほとんどがケイ酸塩鉱物から成り、その結晶構造の差によって、(1)テクトケイ酸塩鉱物、(2)フィロケイ酸塩鉱物、(3)イノケイ酸塩鉱物、(4)ソロケイ酸塩鉱物及びサイクロケイ酸塩鉱物、(5)ネソケイ酸塩鉱物に区分される。これは $\text{SiO}_2$ の量の差にはほぼ対応し、前者から後者へ向かい、 $\text{SiO}_2$ の量は少なくなる。例として、石英・雲母・輝石・緑レン石・かんらん石がそれぞれに対応する。このようにして分類した鉱物及びケイ酸塩以外の鉱物の一覧を表3.2.5に示す。

以下に我が国における結晶質の代表的な岩石であるカコウ岩類と堆積岩の鉱物組成について記す。

### (1) カコウ岩類

カコウ岩類はフェルシックな（ケイ素の多い）深成岩の代表的なものである。日本列島では国土の12%を占めており、深成岩類の中では最も大量に産出する。カコウ岩類を構成する鉱物は一般に無色鉱物が主で、有色鉱物はわずかしか含まれていない。無色鉱物として石英、アルカリ長石、斜長石などがほとんどで、有色鉱物は、白雲母だけ、白雲母と黒雲母、黒雲母だけ、黒雲母と角閃石といった組合せのものが一般的であり、ときには輝石、かんらん石、董青石、珪線石が含まれることもある。副成分鉱物としては、ジルコン、リン灰石、くさび石、磁鉄鉱、チタン鉄鉱、硫化鉄鉱、モナズ石、褐レン石、ざくろ石、電気石、萤石などがある。二次的鉱物あるいは変質鉱物としては、緑泥石、絹雲母、カオリン、モンモリロナイト、緑簾石、プレーナイトなどがある。また沸石が長石を交代して産することもある。

カコウ岩体中には割れ目系が発達しており、その中には、粘土鉱物、沸石類、炭酸塩鉱物などが見出される。これら割れ目系を充填している鉱物の種類と量は岩体により異なっている。いくつかの地域の研究例を表3.2.6に示す。

カコウ岩類中において、地下水は割れ目系の中を流動している。カコウ岩類を構成する鉱物よりも、割れ目系を充填している鉱物が地下水と接しているものと考えられているが、その程度については明らかではない。

カコウ岩とハンレイ岩中の割れ目の充填鉱物については、粘土鉱物、炭酸塩鉱物、緑泥石などが出現する点では共通だが、後者の場合は、この他に蛇紋石が出現する場合がある。カコウ岩の場合は岩体が異なれば、化学組成が違い、それが充填鉱物中の粘土鉱物の組成に反映される（北川、1985）。カコウ岩よりMgに富むハンレイ岩もその化学組成の違いにより、割れ目中にMgに富む蛇紋石が生成されるものと思われる。

このような岩体中に存在する地下水の組成は、Mgにやや富むものと思われるが、実際、ハンレイ岩中の地下水は、例えば石灰岩中のそれに較べても Mg/Ca比が高くなっていることが報告されている。

## (2) 堆積岩

水谷ほか(1987)によれば、堆積岩は地殻のほぼ10%を占めるにすぎないが、堆積岩が地表を覆っている面積比は大きく、海洋底を含めると、地球表面の90%には堆積岩が分布するとされている。そして、堆積岩の中では泥岩が半分以上を占め、砂岩や石灰岩がそれに続く。都城・久城(1975)によれば、堆積岩は成因によって大きく碎屑性堆積岩と化学=生物的堆積岩に分けられ、堆積岩のなかの鉱物を、堆積作用の過程における安定性の見地から見ると、次のような3種類に分けることができる。

- (a) 堆積サイクルのなかのすべての時期、すなわち、風化、分解、運搬、堆積、続成作用などのすべての過程において、いつでも不安定な鉱物。したがって、それらはいつでも、変質して他の安定な鉱物になろうとする傾向をもっているのであるが、変質の起こりやすさは、鉱物によってさまざまに異なっており、またおそらく場合によって異なるであろう。一般に次に列挙する鉱物はこの種類に属していて、たいてい後に書くものほど変質が起こりにくい：カンラン石、輝石、Caに富む斜長石、角閃石、スフェーン、緑簾石、紅柱石、十字石、藍晶石、珪線石、磁鐵鉱、イルメナイト、ザクロ石、スピネル。これらの鉱物は、火成岩や变成岩の中で生成して、碎屑性の物質として堆積岩に入ってくるのである。
- (b) 風化や運搬の時期には不安定で変質の傾向が強いが、堆積して後には、すなわち続成作用の時期になるとあまり変質しない鉱物。一般に次に列挙する鉱物はこの種類に属していて、たいてい後に書くものほど変質が起こりにくい：石コウ、炭酸塩鉱物、リン灰石、グローコナイト、黄鉄鉱、沸石、緑泥石、アルバイト、正長石、微斜カリ長石。
- (c) 堆積サイクルのなかのすべての時期に安定またはそれに近い鉱物。したがって、それらは、碎屑性の物質としても、自生の物質としても出現しうる。それは、粘土鉱物、石英、白雲母、電気石、ジルコン、ルチル、ブルカイト、アナテースなどである。

以上より、カコウ岩類の割れ目の充填鉱物と堆積岩を構成する安定鉱物では、粘土鉱物、炭酸塩鉱物等、共通している鉱物が多く見られる。

### 3.2.3 地下水

#### 3.2.3.1 地下水の分類と我が国における地下水水質形成に関する研究の概要

地下水の分類とその概略の特徴は以下のとおりまとめられる（地学事典, 1970; 新版地学辞典, 1970）「広義には、岩石圈の飽和帶中にある水を地下水という。成因的に、初生水、化石水、循環水に、賦存形態からは、空げき水(pore water)、裂縫(か)水、空洞水に、構造的には、自由水、被圧水とに分類される。初生水は、地下のマグマあるいは火成岩中に含まれていた高温蒸気や熱水溶液が火山ガス・温泉・鉱泉等として初めて地表に現れたもので、マグマ水と言う。化石水は、地層の形成と同時に閉じ込められた水で、油田や天然ガス田のかん水などがこれに属する。循環水(vodos water)は、狭義の地下水(groundwater)で、地表水あるいは大気中の水蒸気と循環過程にある。空げき水は地層の空げきを満たして流動する水であり、裂縫水は、岩石の節理、亀裂あるいは断層破碎帯の間げきを満たして流動するもの、空洞水は、石灰岩や熔岩の空洞中の地下水をいう。自由水は、その上面に賦圧層がなくて通気帯を有し、地下水水面を形成して流動している。被圧水は通気帯、地下水水面を欠き、上部にある不透水性の賦圧層によって被圧され、その位置における大気圧よりも大きい静水圧を有している。」

ある時点のある位置における地下水の化学的特性を規定する主要な要因は、地下水の起源とそれまでに接した岩石との反応である。主要な地下水である循環水についての起源と岩石との反応をまとめると次の通りとなる。すなわち、循環水の起源としては天水が主なものであるが、海水起源のものもある。さらに循環の過程で置かれた地質学的条件によって、その組成は変化する。例えば、岐阜県大垣地域の第四紀の砂・粘土層中の天水起源の地下水は、その流れと共に $\text{HCO}_3^-$ ,  $\text{Na}^+$ が増加する傾向がみられ、比較的浅い層準の地下水と思われる被圧地下水においても、地下を移行するにつれて有機物の分解により溶存酸素が消費されるため、地下水の環境は還元性となることがあることを示した（杉崎・柴田, 1961）。表3.2.7に河川水・海水・化石海水と比較して循環水の水質の例を示す（杉崎, 1968）。また、海水と天水の混合例としては青函トンネルの掘削時における水質変化が挙げられる。海底下100mの地質は第三紀グリーンタフで、地下水がその岩石と反応するとどのように変化するか系統的に調べられている（図3.2.2, 関, 1983; Seki et al., 1980, 1986）。それによると地下水中成分は岩石との反応によって $\text{Ca}^{2+}$ ,  $\text{SO}_4^{2-}$ が増加し、 $\text{Na}^+$ ,  $\text{K}^+$ ,  $\text{Mg}^{2+}$ が減少している。

以上に述べたように、我が国において浅部の地下水の水質の把握例は多いが、深部の信頼できる地下水の報告例は極めて少ない。対して、諸外国では、地層処分の目的で行われた深層ボーリング調査などにより深層地下水の性質について多数報告されている

(Nordstrom et al., 1985 ; Gascoyne et al., 1987 ; Wikberg et al., 1987)。これらの研究から一般的に深地層においては、十分な還元環境が維持されている可能性が高いと思われる。

水理解析によれば、我が国についても地層中の地下水の動きはかなり遅いことが示されつつある(内田, 1992; 柳澤, 1992)。また、油田地帯における化石海水のように、地下深部には循環していない地下水も多い。このような動きのない、または極めて緩慢な動きの地下水がどのような地質環境(共存する岩石、地質構造、地形、深度など)において存在しているのかは地下水の地球化学的特性の把握において重要である。

### 3.2.3.2 我が国の地下水組成データ

我が国においては、浅層部の地下水組成データは比較的多いものの、深部については石油資源・地熱資源・生活用水・工業用水・温泉・土木工事・地震観測などを目的として実施されたボーリング調査によるデータが多く、それらにより得られた地下水の化学組成に関するデータは決して少なくはない。しかしながら、これらのデータはほとんど性能評価上重要なBh等の情報が得られておらず、また、深度が特定できずに得られた地下水が多い。

これらの既存データから約10,000件におよぶ地下水(浅層部、深部)組成を幅広く調査して3.2.2.2項に基づき、比較的広範囲に分布する代表的な4岩種(カコウ岩タイプ、結晶片岩タイプ、新第三系タイプ、古第三系タイプ)毎に整理した結果及び海水組成を表3.2.8に示す。

以下にこれら代表的な4岩種のタイプの地下水組成の特徴及び実測された深部地下水組成データについて述べる。

#### (1) 岩種に対応した地下水組成データ

##### 1) カコウ岩タイプ

このタイプは、白亜紀～古第三紀酸性火成岩に見られるものであり、水素、酸素の同位体の研究(Masuda et al., 1985)から天水起源と推定されている。組成上は、Cl<sup>-</sup>、Na<sup>+</sup>、Ca<sup>2+</sup>に富むNa-Ca-Cl-(HCO<sub>3</sub>)型になり、母岩は流紋岩とされているが、カコウ岩の場合もあり得ると思われる。溶存イオン濃度が一般に高く、地下水の母岩中での滞留時間が比較的長かったものと推定される。

イオン濃度は、Cl<sup>-</sup> = 200～7000mg/lで、HCO<sub>3</sub><sup>-</sup> ≥ Cl<sup>-</sup>の場合が多い。pHは、CO<sub>2</sub>-poorの時は7.1～8.5、CO<sub>2</sub>-richの時は、6.0～6.5の範囲にある。Ca/Na(モル比) = 0.23～0.29で、K/Na(モル比)は10<sup>-3</sup>オーダーである。

## 2) 結晶片岩タイプ

これは、同位体の特徴(Masuda et al., 1985)から天水起源と考えられており、丹波帯などの中・古生層に見られる。この組成上の特徴は、 $\text{Cl}^- = 200\sim 3000\text{mg/l}$ ,  $\text{pH} = 6.0 \sim 6.7$ ,  $\text{Ca}/\text{Na}$ (モル比) = 0.1 ~ 0.11であり、Naに対するCaの量が少ない。また $\text{HCO}_3^-$ の量が多い。

## 3) 新第三系タイプ

このタイプは、新第三系や風化花崗岩の中に見られる地下水である。溶存イオン濃度は他のタイプ程高くない。NaやCaに富み、中性～アルカリ性を示す。これが風化花崗岩に見られるのは、花崗岩が風化したことにより、粘土鉱物に富み、結果的に堆積岩と鉱物組成が一部類似することになったためと考えられる。

## 4) 古第三系タイプ

いわゆる化石地下水で、 $\text{Cl}^- = 4000\sim 20000\text{mg/l}$ の値を持つ。pHは弱酸～弱アルカリで、現在の海水に比べ $\text{Na}/\text{Cl}$ が大きく、 $\text{HCO}_3^-$ も多い。また、一般的に $\text{Ca} > \text{Mg}$ である。又海水中に約3000mg/l含まれていた $\text{SO}_4^{2-}$ はほとんど含まれないが、炭田地帯における炭鉱坑内水では、~1000mg/l程度含まれる例もある。Na-Ca型として表される分布地域は、東北日本グリーンタフ地域であるが、青函トンネルの例で見られるようにグリーンタフ地域においても地下深所においては、この種の地下水が存在するとは限らない。このタイプの地下水は、ガス田、炭田地帯にも見られ、炭田地帯では北海道・宇部・九州、ガス田では静岡県にその分布が見られる。また、地震観測用に掘削された関東平野での深部地下水もこれと似た性質を持っている。

以上の4つの地下水タイプから $\text{Cl}^-$ を指標にして比較してみると、新第三系と古第三系タイプは各々おおよそ降水起源、海水起源と考えられる。また、この2つの地下水の主な特徴としては新第三系タイプは $\text{Na}-\text{HCO}_3$ 型、古第三系タイプは海水と比較し、 $\text{SO}_4^{2-}$ がほとんど存在せず、 $\text{HCO}_3^-$ が多いことである。

### (2) 深部地下水組成測定例(Ochiai et al., 1988)

深部地下水の生成及び特性を把握するために実測されたデータとしては現在岐阜県東濃地域のものに限られている。このデータは深度約130mの既存坑道から掘削したボーリング孔より得られた地下水を対象としている。地下水のサンプリングはボーリング孔にダブルパッカーを挿入して採水区間を区切り(坑道からの深度約40m), テフロンチューブを介して坑道まで地下水を導いて行われた。この地下水について、連続モニタリング装置によってpH, Ehが測定され、また主要溶存成分濃度の分析も行われ

た。表3.2.9には測定された東濃地域の土岐夾炭累層の地下水組成を示す。また原位置で観察された鉱物データを表3.2.10に示す。

### 3.2.3.3 地下水の酸化還元電位 (Eh)

地下深部での地下水のEhは、核種の溶解・移行の評価上重要であるにもかかわらず、pHや他の化学成分の測定と異なり、その測定は極めて困難とされている。電極を用いて測定したデータは電極表面の性質や反応速度などに左右されてしまい、データの意味付けが充分できないことは、河川水や湖沼水など地球表層付近の天然の水圈を扱っている研究者においては古くから問題となってきた (Stumm and Morgan, 1970; Hostettler, 1984; Drever, 1988など)。また、直接的なEhの測定によらず、酸化還元に関与している元素の存在状態 (例えば  $\text{Fe(OH)}_3 - \text{Fe}^{2+}$ ,  $\text{SO}_4^{2-} - \text{HS}^-$ , ヒ素等微量成分にも適用) より間接的に推定する方法 (Wikberg et al., 1983; Wikberg, 1987; Cherry et al., 1979など) や、"equilibration cell"による方法 (Breck, 1974) も提唱されている。地層処分の研究開発においてもEhの測定は重要視され (Wikberg, 1987; Wikberg et al., 1987), 技術開発が進展している (Almen et al., 1986; Nordstrom and Puigdomenech, 1986; SKB, 1986など)。実際に測定した例として、スウェーデンの地下深度 100m 以下のカコウ岩において -0.2 V 以下 (Karlsson and Baeckblom, 1987; Wikberg, 1987), スイスの地下 1,300m のカコウ岩において -0.039 V (Nagra, 1985) という値が公表されている。

我が国においては、深部地下水の実際の測定については上述の東濃鉱山（土岐夾炭累層、カコウ岩）のデータ (Ochiai et al., 1988; Seo et al., 1989; 瀬尾・武田, 1990) を除いて、充分なデータが得られる段階に至っていない。それらの結果によれば、東濃鉱山の地下水のEhについては、-300mV程度であることが明らかになってきている。また、Ehの推定については岩石-水反応実験による方法もあるが、岩石の多様性、地域性などの問題もあり一般性のある実験条件の設定が難しい。さらに実験による方法では、反応時間が天然の深部地下水の反応に比較して極めて短いことなどにより充分なデータが蓄積されていないのが現状である。実際の深部地下水がどの程度古いのかはこれから研究成果が待たれるが、これまでの成果でも実験では再現できない程度に古いものであるらしいことが解明されてきた。例えば、東濃鉱山など深部地下水のトリチウム測定値に基づけば、多くの深部地下水の年齢が少なくとも40年程度以上であることが明らかになっている (動燃事業団, 1991; Ochiai et al., 1988; Seo et al., 1989; 瀬尾・武田, 1990; 小室・鈴木, 1990)。また、最近、水谷 (1992) は炭素同位体比より、東濃鉱山の深部地下水が数千～一万年程度古いという可能性を示唆している。動燃においても、我

が国の地質環境特性に適した測定手法や測定機器の開発に取り組んでいる段階である（動燃事業団，1988；武田・山川，1989）。

このような現状を考慮すると、深部地下水のEhの推定は、(1)深部地下水の化学組成、特に酸化還元に関与している元素の存在状態による間接的方法または、(2)地下水の流動、化学組成に加え岩石の鉱物組成を考慮した熱力学に基づく理論的方法に頼らざるを得ない。ここでは(2)の理論的方法を中心とし、(1)の元素の存在状態のデータで補足する方法が妥当と考えられる。

## 参考文献

- Almen, K. E., Anderson, O., Fridh, B., Johansson, B. E., Sehlstedt, M., Gustafsson, E., Hasson, K., Olsson, O., Nilsson, G., Axelsen, K. and Wikberg, P. (1986) : Site Investigation Equipment for Geological, Geophysical, Hydrogeological and Hydrochemical Characterization, SKB Technical Report 86-16 pp. 1-141.
- Breck, W. G., (1974) : Redox Levels in the Sea , The Sea, vol.5, Goldberg, E.D., ed., Wiley-Interscience, New York, pp.153-179.
- Bricker, O. P. (1967) : Intern. Assoc. Sci. Hydrol. Publ. 78, pp. 110-119
- Bricker, O. P., Godfrey, A. E. and Cleaves, E. T. (1968) : Advances in Chemistry Sevies No. 73, American Chemical Society. Washington, D. C.
- Chebotarev, I. I. (1955) : Geochim. Cosmochim. Acta, 8, pp.22-48, 137-170, 198-212
- Cherry, J.A., Shaukh, A.U., Tallman, D.E. and Nicholson, R.V. (1979) : Arsenic Species as an Indicator of Redox Conditions in Groundwater, J. Hydrol., vol. 43, pp.373-392.
- 地図研地学辞典編集委員会(編) (1970) : 地学辞典, 平凡社, P682.
- Deju, R. A. (1971) : Geol. Soc. Amer. Burr., 82.
- Domenico, P. A. (1972) : Concepts and Models in Groundwater Hydrology. McGraw-Hill, New York.
- 動燃事業団 (1991) : 地層処分研究開発の現状(平成元年度). PNC TN1410 91-009, pp.155.
- Drever, J. I. (1988) : The Geochemistry of Natural Waters, 2nd ed., Prentice Hall, Inc., A Division of Simon & Schuster Englewood Cliffs, New Jersey, pp.437.
- Freeze, R. A. and Cherry, J. A. (1979) : Groundwater, Prentice Hall, USA
- Garrels, R. M. and Howard, P. (1957) : Proc. 6th Nat. Conf. Clays Clay Minerals.
- Gascoyne, M., Davison, C. C., Ross, J. D. and Pearson, R. (1987) : Saline Groundwaters and Brines in Plutons in the Canadian Shield, Geological Association of Canada, GAC Special Paper 33, pp.53~68.

- Germanov, A. I., G. A. Volkov., Lisitsin, A. K. and V. S. Serebennikov(1958) :  
Investigation of the Oxidation Reduction Potential of Ground Waters. Acad.  
Sci. USSR, Moscow, Inst. Geol. Ore Deposits, Petrogr., Mineral, Geochem.,  
pp. 322-329.
- Hitchon, B., Billings, G. K. and Klovan, J. E. (1971) : Geochim. Cosmochim. Acta, 35,  
pp. 567-598.
- Houston, W. N. (1972) : Master's Thesis, McMaster Univ.
- Hostettler, J. D. (1984) : Electrode Electrons, Aqueous Electrons, and Redox Potentials  
in Natural Waters, American J. of Science, vol. 284, June 1984, pp. 734-759.
- 一國雅己 (1989) : ケイ酸塩の風化とその生成物, 季刊化学総説No. 4「土の化学」, 日本化学会編,  
pp. 6~18.
- Karlsson, F. and Baeckblom, G. (1987) : Validation of Radionuclide Migration Models  
within the SKB Research Program on Nuclear Waste Management, GEOVAL 1987 ,  
Symposium in Stockholm, 7-9 April, 1987, Proceedings, vol. 1, pp. 107-137.
- 片山信夫・森本良平・木村敏雄・竹内均 (編) (1970) : 新版地学辞典Ⅱ
- 北川隆司 (1985) : 花こう岩中に見られる粘土細脈と花こう岩の変質について, 吉田博直先生  
退官記念論文集, pp. 93-117.
- 小島圭二 (1979) : 地質工学の方法, 岩波講座 “地球科学” 第14巻「地球の資源／地表の開  
発」, pp. 223~246.
- 小室光世・鈴木滋(1990) : 地層処分研究開発成果報告  
—平成元年度報告会要旨集. PNC N7410 90-018, pp. 70.
- Mason, B (1966) : Principles of Geochemistry(3rd Ed.), John Wiley & Sons, Inc.,
- Masuda, H., Sakai, H., Chiba, H. and Tsurumaki, M. (1985) : Geochemical Characteristics of  
Na-Ca-Cl-HCO<sub>3</sub> Type Waters in Arima and its Vicinity in the Western Kinki  
District, Japan. Geochemical Journal, vol. 19, pp. 149-162.
- 松本聰 (1989) : 土の生成と土壤型, 季刊化学総説No. 4「土の化学」, 日本化学会編,  
pp. 19~32.
- 都城秋穂・久城育夫(1975) : 岩石学Ⅱ, 岩石の性質と分類, 共立全書205, 共立出版 pp. 1-171.
- 水谷伸治郎・斎藤靖二・勘米良亀齡(1987) : 日本の堆積岩, 岩波書店, pp. 1-226.
- 水谷義彦・瀬尾俊弘・太田久仁雄・中井信之・村井康浩(1992) : 岐阜県東濃鉱山深層地下水の  
<sup>14</sup>C年代, シンポジウム論文集『加速器質量分析と炭素同位体の学際的応用』, 名古  
屋大学年代測定資料研究センター, 加速器年代測定実験室, pp. 159-168.
- 森本信男・砂川一郎・都城秋穂 (1975) : 鉱物学, 岩波書店, pp. 1-640.

- Nagra (1985) : Project Gewähr 1985, Nuclear Waste Management in Switzerland : Feasibility Studies and Safety Analysis, Project Report NGB 85-09, pp. 1-186.
- Nordstrom, D. K., Andrews, J. N., Carlsson, L., Fontes, J-C., Fritz, P., Moser, H. and Olsson, T. (1985) : Hydrogeological and Hydrogeochemical Investigations in Boreholes - Final Report of the Phase 1, Geochemical Investigations of the Stripa Groundwaters, Stripa Project, Technical Report, 85-06
- Nordstrom, D. K. and Puigdomenech, I., (1986) : Redox Chemistry of Deep Groundwater in Sweden, SKB Technical Report 86-03, pp. 1-30.
- Ochiai, Y., Yamakawa, M., Takeda, S. and Harashima, F. (1988) : Natural Analogue Study on Tono Uranium Deposit in Japan, CEC N.A. Working Group, pp. 126-138.
- Seidell, A. (1958) : Solubilities, 1, 4th ed. American Chemical Society, D. van Nostrand Co., Princeton, N.J.
- 関陽太郎 (1983) : 青函トンネル海底部における水-岩石相互作用, 三鉱学会, 講演要旨集, pp. 4~9.
- Seki, Y., Dickson, F.W., Liou, J.G., Oki, Y., Sakai, H. and Hirano, T., (1986) : Geochemical Prediction of Impending Catastrophic Inflow of Seawater during Constitution of the Undersea Part of the Seikan Tunnel, Japan, Applied Geochemistry, Vol. 1, pp. 317~333.
- Seki, Y., Liou, J.G., Oki, Y., Dickson, F.W., Sakai, H. and Hirano, T., (1980) : The Interaction between Miocene Volcanogenic Rocks and Seawater-meteoric Water Mixtures in Near Coast Undersea Part of the Seikan Tunnel, Japan, Hydroscience and Geotechnology Laboratory, Saitama Univ. Memoir. No. 1, pp. 1~123.
- Seo, T., Ochiai, Y., Takeda, S. and Nakatuka, N. (1989) : Natural Analogue Study on Tono Sandstone-type Uranium Deposit in Japan, Proceeding of the 1989 Joint International Waste Management Conference, vol. 2, pp. 353-358.
- 瀬尾俊弘・武田精悦 (1990) : 東濃地域における深部地下水の地球化学的特性について、日本原子力学会 1990年 秋の大会予稿集, pp. 718.
- SKB (1986) : R&D-Programme 86, Handling and Final Disposal of Nuclear Waste, Programme for Research Development and Other Measures, pp. 1-188.
- Simonson, R. W., (1959) : Modern Concepts of Soil Genesis - A Symposium, Soil. Sci. Soc. Am. Proc., 23, 152.

- Stumm, W. (1978) : What is the pe of the Sea? Thalassia Jugosl., vol. 14, pp. 197-208.
- Stumm, W. and Morgan, J. J. (1970) : Aquatic Chemistry, 1st ed., Wiley-Interscience, New York, pp. 780.
- Stumm, W. and Morgan, J. J. (1981) : Aquatic Chemistry, 2nd ed., A Wiley-Interscience, USA
- 杉崎隆一 (1963) : 地下水の起源と由来—その化学的考察—, 用水と廃水, Vol. 5, No. 1, pp. 877~889.
- 杉崎隆一・柴田 賢 (1961) : 地下水の地球化学的研究 (第2報), 地質学雑誌, Vol. 67 pp. 427~439.
- 諏訪兼位・蟹沢聰史・高橋正樹 (1989) : かこう岩, 「日本の火成岩」, 岩波書店, pp. 139~173.
- 武田精悦・山川稔 (1989) : 地層処分のための地質環境データの現状について.  
PNC N7410 89-002. pp. 43.
- 徳山 明 (1983) : 古期深層風化, 地学雑誌, vol. 92, No. 7, pp. 48~54.
- 内田雅大・岡本二郎 (1992) : 仮想的垂直二次元水理地質モデルに基づく我が国の水理特性の検討, 動燃事業団技術資料 PNC TN8410 92-168
- 歌田 実 (1979) : 風化作用とその生成物, 岩波講座“地球科学”第5巻「地球表層の物質と環境」, pp. 10~22.
- 柳澤孝一・今井 久・古屋和夫・若松尚則・梅田浩司 (1992) : 我が国を対象とした地下水流動解析 (その1) —中部日本を対象とした地下水流動解析—, PNC TN7410 92-019 TR/GE 92-04.
- Wikberg, P., Grenthe I. and Axelsen, K. (1983) : Redox Condition in Groundwaters from Swartoberget, Gidea, Fjallveden and Kamlunge, SLBF/KBS Report 83-40.
- Wikberg, P. (1987) : Redox Conditions of the Groundwater-rock System, Migration '87, Munich, Abstract, International Conference on Chemistry and Migration Behaviour of Actinides and Fission Products in the Geosphere, Munich, 14-18 September, 1987, pp. 114-115.
- Wikberg, P., Axelsen, K. and Freudlund, F. (1987) : Deep Groundwater Chemistry, SKB Technical Report 87-07, pp. 1-35.
- Wollast, R. (1967) : Geochim. Cosmochim. Acta, 31, pp. 635-648

表3.1.1 種々の鉱物の調和溶解反応

Dissociation Reactions, Equilibrium Constants,  
and Solubilities of Some Minerals that Dissolve  
Congruently in Water at 25°C and 1 Bar Total  
Pressure

Mineral	Dissociation reaction	Equilibrium constant $K_{eq}$	Solubility at pH 7 (mg/l or g/m³)
Gibbsite	$\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 2\text{H}_2\text{O} + \text{H}_2\text{O} = 2\text{Al}^{3+} + 6\text{OH}^-$	$10^{-3.4}$	0.001
Quartz	$\text{SiO}_2 + 2\text{H}_2\text{O} = \text{Si}(\text{OH})_4$	$10^{-3.7}$	12
Hydroxylapatite	$\text{Ca}_5\text{OH}(\text{PO}_4)_3 = 5\text{Ca}^{2+} + 3\text{PO}_4^{3-} + \text{OH}^-$	$10^{-55.6}$	30
Amorphous silica	$\text{SiO}_2 + 2\text{H}_2\text{O} = \text{Si}(\text{OH})_4$	$10^{-2.7}$	120
Fluorite	$\text{CaF}_2 = \text{Ca}^{2+} + 2\text{F}^-$	$10^{-8.8}$	160
Dolomite	$\text{CaMg}(\text{CO}_3)_2 = \text{Ca}^{2+} + \text{Mg}^{2+} + 2\text{CO}_3^{2-}$	$10^{-17.0}$	90, * 480†
Calcite	$\text{CaCO}_3 = \text{Ca}^{2+} + \text{CO}_3^{2-}$	$10^{-8.4}$	100, * 500†
Gypsum	$\text{CaSO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O} = \text{Ca}^{2+} + \text{SO}_4^{2-} + 2\text{H}_2\text{O}$	$10^{-4.5}$	2100
Sylvite	$\text{KCl} = \text{K}^+ + \text{Cl}^-$	$10^{+0.9}$	264,000
Epsomite	$\text{MgSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O} = \text{Mg}^{2+} + \text{SO}_4^{2-} + 7\text{H}_2\text{O}$	—	267,000
Mirabilite	$\text{Na}_2\text{SO}_4 \cdot 10\text{H}_2\text{O} = 2\text{Na}^+ + \text{SO}_4^{2-} + 10\text{H}_2\text{O}$	$10^{-1.6}$	280,000
Halite	$\text{NaCl} = \text{Na}^+ + \text{Cl}^-$	$10^{+1.8}$	360,000

\* Partial pressure of  $\text{CO}_2 = 10^{-3}$  bar.

† Partial pressure of  $\text{CO}_2 = 10^{-1}$  bar.

SOURCE : Solubility Data

表3.1.2 地下水中の溶存酸素の消費に寄与し得る無機化学反応

Process	Reaction *
Sulfide oxidation	$\text{O}_2 + \frac{1}{2}\text{HS}^- = \frac{1}{2}\text{SO}_4^{2-} + \frac{1}{2}\text{H}^+$
Iron oxidation	$\frac{1}{4}\text{O}_2 + \text{Fe}^{2+} + \text{H}^+ = \text{Fe}^{3+} + \frac{1}{2}\text{H}_2\text{O}$
Nitrification	$\text{O}_2 + \frac{1}{2}\text{NH}_4^+ = \frac{1}{2}\text{NO}_3^- + \text{H}^+ + \frac{1}{2}\text{H}_2\text{O}$
Manganese oxidation	$\text{O}_2 + 2\text{Mn}^{2+} + 2\text{H}_2\text{O} = 2\text{MnO}_2(\text{s}) + 4\text{H}^+$
Iron sulfide oxidation †	$\frac{15}{4}\text{O}_2 + \text{FeS}_2(\text{s}) + \frac{7}{2}\text{H}_2\text{O} = \text{Fe}(\text{OH})_3(\text{s}) + 2\text{SO}_4^{2-} + 4\text{H}^+$

\* (s), solid.

† Expressed as a combined reaction.

表3.1.3 地下環境下における酸化還元半反応

(1) $\frac{1}{4}O_2 + H^+ + e^- = \frac{1}{2}H_2O$	(18) $\frac{1}{8}SO_4^{2-} + \frac{9}{8}H^+ + e^- = \frac{1}{8}HS^- + \frac{1}{2}H_2O$
(2) $H^+ + e^- = \frac{1}{2}H_2(g)$	(19) $\frac{1}{2}S(s) + H^+ + e^- = \frac{1}{2}H_2S(g)$
(3) $H_2O + e^- = \frac{1}{2}H_2(g) + OH^-$	(20) $Fe^{3+} + e^- = Fe^{2+}$
(4) $\frac{1}{5}NO_3^- + \frac{6}{5}H^+ + e^- = \frac{1}{10}N_2(g) + \frac{3}{5}H_2O$	(21) $Fe(OH)_3(s) + HCO_3^- + 2H^+ + e^- = Fe(CO_3)(s) + 3H_2O$
(5) $\frac{1}{2}NO_3^- + H^+ + e^- = \frac{1}{2}NO_2^- + \frac{1}{2}H_2O$	(22) $Fe(OH)_3(s) + 3H^+ + e^- = Fe^{2+} + 3H_2O$
(6) $\frac{1}{8}NO_3^- + \frac{5}{4}H^+ + e^- = \frac{1}{8}NH_4^+ + \frac{3}{8}H_2O$	(23) $Fe(OH)_3(s) + H^+ + e^- = Fe(OH)_2(s) + H_2O$
(7) $\frac{1}{6}NO_2^- + \frac{4}{3}H^+ + e^- = \frac{1}{6}NH_4^+ + \frac{1}{3}H_2O$	(24) $\frac{1}{2}FeS_2(s) + 2H^+ + e^- = \frac{1}{2}Fe^{2+} + H_2S(g)$
(8) $\frac{1}{4}NO_3^- + \frac{5}{4}H^+ + e^- = \frac{1}{8}N_2O(g) + \frac{5}{8}H_2O$	(25) $\frac{1}{2}Fe^{2+} + S(s) + e^- = \frac{1}{2}FeS_2(s)$
(9) $\frac{1}{2}NO_2^- + \frac{3}{2}H^+ + e^- = \frac{1}{4}N_2O(g) + \frac{3}{4}H_2O$	(26) $\frac{1}{16}Fe^{2+} + \frac{1}{8}SO_4^{2-} + e^- = \frac{1}{16}FeS_2(s) + \frac{1}{2}H_2O$
(10) $\frac{1}{6}N_2(g) + \frac{4}{3}H^+ + e^- = \frac{1}{3}NH_4^+$	(27) $\frac{1}{14}Fe(OH_2)(s) + \frac{1}{7}SO_4^{2-} + \frac{9}{7}H^+ + e^- = \frac{1}{14}FeS_2(s) + \frac{5}{7}H_2O$
(11) $\frac{1}{4}CH_2O + H^+ + e^- = \frac{1}{4}CH_4(g) + \frac{1}{4}H_2O$	(28) $\frac{1}{14}Fe(CO_3)(s) + \frac{1}{7}SO_4^{2-} + \frac{17}{14}H^+ + e^- = \frac{1}{14}FeS_2(s) + \frac{4}{7}H_2O + \frac{1}{14}HCO_3^-$
(12) $\frac{1}{4}CO_2(g) + H^+ + e^- = \frac{1}{4}CH_2O + \frac{1}{4}H_2O$	(29) $\frac{1}{2}MnO_2(s) + \frac{1}{2}HCO_3^- + \frac{3}{2}H^+ + e^- = \frac{1}{2}MnCO_3(s) + \frac{3}{8}H_2O$
(13) $\frac{1}{2}CH_2O + H^+ + e^- = \frac{1}{2}CH_3OH$	(30) $Mn^{2+} + 2e^- = Mn(s)$
(14) $\frac{1}{8}CO_2(g) + H^+ + e^- = \frac{1}{8}CH_4(g) + \frac{1}{4}H_2O$	(31) $\frac{1}{2}MnCO_3 + \frac{1}{2}H^+ + e^- = \frac{1}{2}Mn(s) + \frac{1}{2}HCO_3^-$
(15) $\frac{1}{2}CH_3OH + H^+ + e^- = \frac{1}{2}CH_4(g) + \frac{1}{2}H_2O$	(32) $MnOOH(s) + HCO_3^- + 2H^+ + e^- = MnCO_3 + 2H_2O$
(16) $\frac{1}{6}SO_4^{2-} + \frac{4}{3}H^+ + e^- = \frac{1}{6}S(s) + \frac{2}{3}H_2O$	(33) $MnO_2 + H^+ + e^- = MnOOH$
(17) $\frac{1}{8}SO_4^{2-} + \frac{5}{4}H^+ + e^- = \frac{1}{8}H_2S(g) + \frac{1}{2}H_2O$	

表3.1.4 代表的なアルミニノケイ酸塩鉱物間の化学反応

Gibbsite-kaolinite	$\underline{\text{Al}_2\text{O}_3} \cdot 3\text{H}_2\text{O} + 2\text{Si(OH)}_4 = \underline{\text{Al}_2\text{Si}_2\text{O}_5(\text{OH})_4} + 5\text{H}_2\text{O}$
Na-montmorillonite-kaolinite	$\underline{\text{Na}_{0.33}\text{Al}_{2.33}\text{Si}_{3.67}\text{O}_{10}(\text{OH})_2} + \frac{1}{3}\text{H}^+ + \frac{23}{6}\text{H}_2\text{O} = \underline{\frac{7}{6}\text{Al}_2\text{Si}_2\text{O}_5(\text{OH})_4} + \frac{1}{3}\text{Na} + \frac{4}{3}\text{Si(OH)}_4$
Ca-montmorillonite-kaolinite	$\underline{\text{Ca}_{0.33}\text{Al}_{4.67}\text{Si}_{7.33}\text{O}_{20}(\text{OH})_4} + \frac{2}{3}\text{H}^+ + \frac{23}{2}\text{H}_2\text{O} = \underline{\frac{7}{3}\text{Al}_2\text{Si}_2\text{O}_5(\text{OH})_4} + \frac{1}{3}\text{Ca}^{2+} + \frac{8}{3}\text{Si(OH)}_4$
Illite-kaolinite	$\underline{\text{K}_{0.6}\text{Mg}_{0.25}\text{Al}_{2.30}\text{Si}_{3.5}\text{O}_{10}(\text{OH})_2} + \frac{11}{10}\text{H}^+ + \frac{63}{60}\text{H}_2\text{O} = \underline{\frac{23}{20}\text{Al}_2\text{Si}_2\text{O}_5(\text{OH})_4} + \frac{3}{5}\text{K}^+ + \frac{1}{4}\text{Mg}^{2+} + \frac{6}{5}\text{Si(OH)}_4$
Biotite-kaolinite	$\underline{\text{KMg}_3\text{AlSi}_3\text{O}_{10}(\text{OH})_2} + 7\text{H}^+ + \frac{1}{2}\text{H}_2\text{O} = \underline{\frac{1}{2}\text{Al}_2\text{Si}_2\text{O}_5(\text{OH})_4} + \text{K}^+ + 3\text{Mg}^{2+} + 2\text{Si(OH)}_4$
Albite-kaolinite	$\underline{\text{NaAlSi}_3\text{O}_8} + \text{H}^+ + \frac{9}{2}\text{H}_2\text{O} = \underline{\frac{1}{2}\text{Al}_2\text{Si}_2\text{O}_5(\text{OH})_4} + \text{Na}^+ + 2\text{Si(OH)}_4$
Albite-Na-montmorillonite	$\underline{\text{NaAlSi}_3\text{O}_8} + \frac{6}{7}\text{H}^+ + \frac{20}{7}\text{H}_2\text{O} = \underline{\frac{3}{7}\text{Na}_{0.33}\text{Al}_{2.33}\text{Si}_{3.67}\text{O}_{10}(\text{OH})_2} + \frac{6}{7}\text{Na}^+ + \frac{10}{7}\text{Si(OH)}_4$
Microcline-kaolinite	$\underline{\text{KAlSi}_3\text{O}_8} + \text{H}^+ + \frac{9}{2}\text{H}_2\text{O} = \underline{\frac{1}{2}\text{Al}_2\text{Si}_2\text{O}_5(\text{OH})_4} + \text{K}^+ + 2\text{Si(OH)}_4$
Anorthite-kaolinite	$\underline{\text{CaAl}_2\text{Si}_2\text{O}_8} + 2\text{H}^+ + \text{H}_2\text{O} = \underline{\text{Al}_2\text{Si}_2\text{O}_5(\text{OH})_4} + \text{Ca}^{2+}$
Andesine-kaolinite	$\underline{\text{Na}_{0.5}\text{Ca}_{0.5}\text{Al}_{1.5}\text{Si}_{2.5}\text{O}_8} + \frac{3}{2}\text{H}^+ + \frac{11}{4}\text{H}_2\text{O} = \underline{\frac{3}{4}\text{Al}_2\text{Si}_2\text{O}_5(\text{OH})_4} + \frac{1}{2}\text{Na}^+ + \frac{1}{2}\text{Ca}^{2+} + \text{Si(OH)}_4$
Potassium-feldspar-muscovite	$\underline{\text{KAlSi}_3\text{O}_8} + \frac{2}{3}\text{H}_2\text{CO}_3 + 4\text{H}_2\text{O} = \underline{\frac{2}{3}\text{K}^+ + \frac{2}{3}\text{HCO}_3^- + 2\text{Si(OH)}_4 + \frac{1}{3}\text{KAl}_3\text{Si}_3\text{O}_{10}(\text{OH})_2}$

\* Solid phases are underlined.

表3.1.5 土壤-石灰岩-石コウ-砂岩-頁岩系での地下水組成の変遷

Zone	Geochemical processes	Groundwater chemistry * at 25°C							Saturation indices	
		Na	Ca	HCO <sub>3</sub>	SO <sub>4</sub>	TDS	pH	P <sub>CO<sub>2</sub></sub>	SI <sub>c†</sub>	SI <sub>R‡</sub>
(1) Organic soil horizon near ground surface	Water acquires CO <sub>2</sub> at a partial pressure of 10 <sup>-2</sup> bar	0	0	0.07	0	21§	4.9	10 <sup>-2</sup>	0	0
(2) Limestone (calcite)	Open-system dissolution of calcite by CO <sub>2</sub> -charged water	0	66	203	0	290	7.3	10 <sup>-2</sup>	1	0
(3) Gypsum	Dissolution of gypsum to saturation; calcite supersaturation develops	0	670	203	1400	2330	7.3	10 <sup>-2</sup>	6.7	1
(4) Sandstone (quartz and plagioclase)	Precipitation of calcite caused reestablishment to calcite equilibrium	0	650	140	1400	2250	6.7	10 <sup>-1.6</sup>	1	0.95
(5) Shale(Na-montmorillonite)	Exchange of Ca <sup>2+</sup> for Na <sup>+</sup> causes undersaturation with respect to calcite and gypsum	725	20	140	1400	2350	6.7	10 <sup>-1.6</sup>	0.06	0.2

\* Concentrations expressed in mg/l

† SI<sub>c</sub> = [Ca<sup>2+</sup>][CO<sub>3</sub><sup>2-</sup>] / K.‡ SI<sub>R</sub> = [Ca<sup>2+</sup>][SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>] / K.§ TDS is comprised mainly of dissolved CO<sub>2</sub> (i.e., H<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>).

表3.1.6 土壤-砂岩-頁岩-石灰岩-石コウでの地下水組成の変遷

Zone	Geochemical processes	Groundwater chemistry * at 25°C							Saturation indices	
		Na	Ca	HCO <sub>3</sub>	SO <sub>4</sub>	TDS	pH	P <sub>CO<sub>2</sub></sub>	SI <sub>c</sub> †	SI <sub>R‡</sub>
(1) Organic soil horizon near ground surface	Water acquires CO <sub>2</sub> at a partial pressure of 10 <sup>-2</sup> bar	0	0	0.07	0	21§	4.9	10 <sup>-2.4</sup>	0	0
(2) Sandstone (quartz and plagioclase)	Closed-system incongruent dissolution of plagioclase (0.2 mmol H <sub>2</sub> CO <sub>3</sub> consumed)	1.6	2.8	12	0	38¶	6.5	10 <sup>-2.4</sup>	0.0005	0
(3) Shale(Na-montmorillonite)	Exchange of Ca <sup>2+</sup> for Na <sup>+</sup>	3.9	0.8	12	0	38	6.5	10 <sup>-2.4</sup>	0.0001	0
(4) Limestone (calcite)	Closed-system dissolution of calcite to saturation	3.9	8.4	31	0	55	8.9	10 <sup>-4.4</sup>	1	0
(5) Gypsum	Dissolution of gypsum to saturation	3.9	600	31	1440	2100	8.9	10 <sup>-4.4</sup>	75	1

\* Concentrations expressed in mg/l

† SI<sub>c</sub> = [Ca<sup>2+</sup>][CO<sub>3</sub><sup>2-</sup>] / K.‡ SI<sub>R</sub> = [Ca<sup>2+</sup>][SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>] / K.§ TDS is comprised mainly of dissolved CO<sub>2</sub> (i.e., H<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>).¶ Includes dissolved CO<sub>2</sub> and Si(OH)<sub>4</sub>.

表3.1.7 a 地球化学プロセスと地下水化学特性との関連

地下水化学特性 関連する地球化学プロセス		Eh	pH	陽イオン濃度				陰イオン濃度				備考	
				K <sup>+</sup>	Na <sup>+</sup>	Ca <sup>2+</sup>	Mg <sup>2+</sup>	HCO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	Cl <sup>-</sup>	PO <sub>4</sub> <sup>3-</sup>		
1. 大 氣 中 で の プロ セス	1.1 大気からの酸素の供給	↑	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	
	1.2 大気からの炭酸ガスの供給 $H_2O + CO_2 = H_2CO_3$ $H_2CO_3 = H^+ + HCO_3^-$ $HCO_3^- = H^+ + CO_3^{2-}$	-	↓	-	-	-	-	↑	-	-	-	-	
	1.3 大気からの S 及び SO <sub>2</sub> の供給 $S + O_2 = SO_2(g)$ $SO_2 + H_2O + \frac{1}{2}O_2 = SO_4^{2-} + 2H^+$	-	↓	-	-	-	-	-	↑	-	-	-	
2. 土 壤 中 口 で セ の ス	2.1 有機物の腐敗 $CH_2O + O_2(g) = CO_2(g) + H_2O$	*1 ↓	*2 ↓	-	-	*3 ↑	*4 ↑	*2 ↑	-	-	-	-	* <sup>1</sup> 水中の溶存酸素の消費による。 * <sup>2</sup> CO <sub>2</sub> 分圧の上昇による。 * <sup>3</sup> 方解石の溶解を介して影響を及ぼす。 * <sup>4</sup> ドロマイトの溶解を介して影響を及ぼす。
3. 不 飽 和 化 層 中 セ で ス	3.1 開放系での方解石の溶解 $CaCO_3 + H_2O + CO_2(g) = Ca^{2+} + 2HCO_3^-$	-	↑	-	-	↑	-	↑	-	-	-	-	有機物の腐敗によりCO <sub>2</sub> 分圧が一定に保たれる系での方解石の溶解。閉鎖系に比して溶解度が高い。
	3.2 開放系でのドロマイトの溶解 $CaMg(CO_3)_2 = Ca^{2+} + Mg^{2+} + 2CO_3^{2-}$	-	↑	-	-	↑	↑	↑	-	-	-	-	

表3.1.7 b 地球化学プロセスと地下水化学特性との関連

関連する地球化学プロセス	地下水化学特性		Eh	pH	陽イオン濃度				陰イオン濃度				備 考
	K <sup>+</sup>	Na <sup>+</sup>			Ca <sup>2+</sup>	Mg <sup>2+</sup>	HCO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	Cl <sup>-</sup>	PO <sub>4</sub> <sup>3-</sup>	F <sup>-</sup>		
4. 飽和層中でのプロセス	4.1 閉鎖系での方解石の溶解	-	↑	-	-	↑	-	↑	-	-	-	-	Ca <sup>2+</sup> /Mg <sup>2+</sup> 比は、方解石-ドロマイトの存在状態及び温度等によって変動し得る。
	4.2 閉鎖系でのドロマイトの溶解	-	↑	-	-	↑	↑	↑	-	-	-	-	
	4.3 石コウの溶解 CaSO <sub>4</sub> · 2H <sub>2</sub> O = Ca <sup>2+</sup> + SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> + 2H <sub>2</sub> O	-	-	-	-	↑	-	-	↑	-	-	-	
	4.4 硬石コウの溶解 CaSO <sub>4</sub> = Ca <sup>2+</sup> + SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	-	-	-	-	↑	-	-	↑	-	-	-	
	4.5 石英の溶解 SiO <sub>2</sub> + H <sub>2</sub> O = Si(OH) <sub>4</sub> <sup>0</sup>	-	↓↑	-	-	-	-	-	-	-	-	-	ケイ酸塩鉱物との共存の有無によってpHは変動する。
5. 結晶質岩中のプロセス	5.1 長石鉱物の粘土鉱物等への変化	-	↑	↑	↑	↑	↑	-	-	-	-	-	地下水中のSiO <sub>2</sub> の主要な供給源でもある。
	5.2 粘土鉱物の変化	-	↑	↑	↑	↑	↑	-	-	-	-	-	
	5.3 粘土鉱物のイオン交換	-	↑	↑↓	↑↓	↑↓	↑↓	-	-	-	-	-	
	5.4 二価の鉄を含む鉱物 (磁鐵鉱) の酸化 $2 \text{Fe}_3\text{O}_4 + 1/2\text{O}_2 = 3 \text{Fe}_2\text{O}_3$	↓	--	-	-	-	-	-	-	-	-	-	玄武岩中で、有機物の腐敗に代わり、溶存酸素を消費する例が知られている。

表3.1.7 c 地球化学プロセスと地下水化学特性との関連

地下 水 化 学 特 性 関連する地球化学プロセス	Eh	pH	陽イオン濃度				陰イオン濃度				備 考	
			K <sup>+</sup>	Na <sup>+</sup>	Ca <sup>2+</sup>	Mg <sup>2+</sup>	HCO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	Cl <sup>-</sup>	PO <sub>4</sub> <sup>3-</sup>		
6. 堆積岩中でのプロセス	6.1 粘土鉱物(Na-モンモリロナイト)の陽イオン交換と方解石(もしくはドロマイト)の溶解との複合効果 $\text{CaCO}_3 + \text{H}_2\text{O} + \text{CO}_2 \rightarrow \text{Ca}^{2+} + 2\text{HCO}_3^-$ $\text{Ca}^{2+}(\text{aq}) + 2\text{Na}(\text{ad}) \rightarrow \text{Ca}(\text{ad}) + 2\text{Na}^+(\text{aq})$	-	↑	-	↑	↑↓	-	↑	-	-	-	二つの反応の複合効果により、 $\text{HCO}_3^-$ 濃度が数千mg/lに到る。
	6.2 土壌域より下での $\text{CO}_2$ の発生 $2\text{CH}_2\text{O} + \text{SO}_4^{2-} = \text{HCO}_3^- + \text{HS}^- + \text{CO}_2 + \text{H}_2\text{O}$	↓	-	-	-	-	-	↑	↓	-	-	飽和領域での夾炭累層において見られる。
	6.3 硫化鉱物(黄鉄鉱)の酸化 $\text{FeS}_2(\text{s}) + 15/4\text{O}_2 + 7/2\text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{Fe}(\text{OH})_3(\text{s}) + 4\text{H}^+ + 2\text{SO}_4^{2-}$	-	*1 ↓	-	-	-	-	-	↑	-	-	*1 6.1 の反応によるpHの上昇を相殺する。
	6.4 membrane filtration	-	-	-	↑	-	-	-	-	↑	-	高圧縮された深部の堆積岩が半透膜として作用し、 $\text{Na}^+$ と $\text{Cl}^-$ を保存する。
	6.5 方解石のドロマイト化	-	-	-	-	↑	↓	-	-	-	-	membrane filtrationにより保有される、水中の $\text{Mg}^{2+}$ を $\text{Ca}^{2+}$ に置換する。

表3.1.7 d 地球化学プロセスと地下水化学特性との関連

関連する地球化学プロセス	Eh	pH	陽イオン濃度				陰イオン濃度				備考
			K <sup>+</sup>	Na <sup>+</sup>	Ca <sup>2+</sup>	Mg <sup>2+</sup>	HCO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	Cl <sup>-</sup>	PO <sub>4</sub> <sup>3-</sup>	
4.5 二酸化マンガンの還元 $\text{CH}_2\text{O} + 2 \text{MnO}_2(\text{s}) + 3\text{H}^+ = 2\text{Mn}^{2+} + \text{HCO}_3^- + 2\text{H}_2\text{O}$	buffer	↑	-	-	-	-	↑	-	-	-	
			-	-	-	-	↑	-	-	-	
			-	-	-	-	↑	-	-	-	
			-	-	-	-	↑	-	-	-	
4.6 三価の鉄鉱物の還元 $\text{CH}_2\text{O} + 4\text{Fe(OH)}_3(\text{s}) + 7\text{H}^+ = 4\text{Fe}^{2+} + \text{HCO}_3^- + 10\text{H}_2\text{O}$	buffer	↑	-	-	-	-	↑	-	-	-	
			-	-	-	-	↑	-	-	-	
			-	-	-	-	↑	-	-	-	
			-	-	-	-	↑	-	-	-	
4.7 SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> の還元 $\text{CH}_2\text{O} + 1/2\text{SO}_4^{2-} = 1/2\text{HS}^- + \text{HCO}_3^- + 1/2\text{H}^+$	buffer	↓	-	-	-	-	↑	↓	-	-	
			-	-	-	-	↑	↓	-	-	
			-	-	-	-	↑	↓	-	-	
			-	-	-	-	↑	↓	-	-	
4.8 CH <sub>4</sub> の発酵作用 $\text{CH}_2\text{O} + 1/2\text{H}_2\text{O} = 1/2\text{CH}_4 + 1/2\text{HCO}_3^- + 1/2\text{H}^+$	buffer	↓	-	-	-	-	↑	-	-	-	
			-	-	-	-	↑	-	-	-	
			-	-	-	-	↑	-	-	-	
			-	-	-	-	↑	-	-	-	

表3.2.1 火成岩の岩型の簡単な分類表（都城・久城（1975）による）

		マフィック火成岩類	中間火成岩類	フェルシック火成岩類	
マフィック鉱物の体積 %	70	4	0	2	0
長 石		Caに富む斜長石	中性の斜長石	Naに富む斜長石, カリ長石	
				斜長石>カリ長石	斜長石<カリ長石
長石とシリカ鉱物を含む (ソレアイト系列、カルクアルカリ系列)	細粒	玄武岩	安山岩	デイサイト	流紋岩
	中粒	石英ドレライト	石英閃緑岩ポーフィリー	カコウ閃緑岩ポーフィリー	カコウ岩ポーフィリー
	粗粒	石英ガブロ	石英閃緑岩	カコウ閃緑岩 石英モンゾニ岩	カコウ岩
長 石		Caに富む斜長石	中性～Naに富む斜長石、 カリ長石 (斜長石≈カリ長石)	Naに富む斜長石, カリ長石 (斜長石<カリ長石)	
長石に富むがシリカ鉱物も準長石も含まない (ソレアイト系列の一部、アルカリ系列の一部)	細粒	玄武岩 カンラン石玄武岩	粗面安山岩 ミュゲアライト	粗面岩	
	中粒	ドレライト カンラン石ドレライト	モンゾニ岩ポーフィリー	閃長岩ポーフィリー	
	粗粒	ガブロ カンラン石ガブロ	モンゾニ岩	閃長岩	
準長石を含む (アルカリ岩系列)	細粒	ペイサナイト カンラン石ネフェリナイト	テフライト	フォノライト	
	中粒	テッシェナイト	ネフェリンモンゾニ岩ポーフィリー	チングアイト	
	粗粒	エセクサイト、アイジョライト	ネフェリン・モンゾニ岩	ネフェリン閃長岩	

注。この表にあげた岩型のなかで、長石を含まないのはカンラン石ネフェリナイトとアイジョライトだけである。

表3.2.2 堆積岩の簡単な分類（都城・久城（1975）を一部改変）

## (A) 碎屑性の堆積岩

- (1) 粗粒のもの：例は礫岩、角礫岩
- (2) 中粒のもの：例は砂岩
- (3) 細粒のもの：例は頁岩、泥岩

## (B) 化学的=生物的堆積岩

- (1) 炭酸塩を主とするもの：例は石灰岩、ドロマイド
- (2) シリカ質：例はチャート、ダイアトマイト
- (3) 鉄質：例は鉄鉱層
- (4) アルミニナ質：例はボーキサイト
- (5) 磷酸塩質：例はフォスフォライト
- (6) 水溶性塩類：例は岩塩、石膏などの蒸発岩

表3.2.3 風化の各型の特徴（歌田（1979）による）

	溶脱帶	集積帶
B L - K型	溶脱成分…Si, Mg, Ca, Na, K 生成鉱物…ギブサイト, ベーマイト, ダイアスボア, ゲーサイト, ヘマタイト, アナターゼ	濃集成分…Si, (Mg) 生成鉱物…カオリナイト, オパール
K - M型	溶脱成分…Fe, Si, Mg, Ca, Na, K 生成鉱物…カオリナイト, ハロサイト	濃集成分…Mg, (Fe) 生成鉱物…モンモリロナイト, オパール
P - Z型	溶脱成分…Al, Si, Mg, Ca, Na, K 生成鉱物…パラゴナイト	濃集成分…Mg, Ca, Na, K, (Si), (Al) 生成鉱物…アナルシム, フィリップサイト, ナトロライト, トムソナイト, メソライト, キャバザイト, モンモリロナイト, オパール, 方解石, Mg方解石

表3.2.4 a 地殻の岩石における元素の平均含有量  
(g/ton すなわちppm 希ガスと短寿命の放射性元素は除外した)

原子番号	元 素	地殻平均	カコウ岩 G - 1	ドレライト W - 1
1	H	1,400	400	600
3	Li	20	24	12
4	Be	2.8	3	0.8
5	B	10	2	17
6	C	200	200	100
7	N	20	8	14
8	O	466,000	485,000	449,000
9	F	625	700	250
11	Na	28,300	24,600	15,400
12	Mg	20,900	2,400	39,900
13	Al	81,300	74,300	78,600
14	Si	277,200	339,600	246,100
15	P	1,050	390	650
16	S	260	175	185
17	Cl	130	50	
19	K	25,900	45,100	5,300
20	Ca	36,300	9,900	78,300
21	Sc	22	3	34
22	Ti	4,400	1,500	6,400
23	V	135	16	240
24	Cr	100	22	120
25	Mn	950	230	1,320
26	Fe	50,000	13,700	77,600
27	Co	25	2.4	50
28	Ni	75	2	78
29	Cu	55	13	110
30	Zn	70	45	82
31	Ga	15	18	16
32	Ge	1.5	1.0	1.6
33	As	1.8	0.8	2.2
34	Se	0.05		
35	Br	2.5	0.5	0.5
37	Rb	90	220	22
38	Sr	375	250	180
39	Y	33	13	25
40	Zr	165	210	100
41	Nb	20	20	10
42	Mo	1.5	7	0.5
44	Ru	0.01		
45	Rh	0.005		
46	Pd	0.01	0.01	0.02
47	Ag	0.07	0.04	0.06
48	Cd	0.2	0.06	0.3

Mason (1966) より

表3.2.4 b 地殻の岩石における元素の平均含有量

(g/ton すなわちppm, 希ガスと短寿命の放射性元素は除外した)

原子番号	元 素	地殻 平 均	カコウ岩		ドレライト W - 1
			G - 1		
49	In	0.1	0.03		0.08
50	Sn	2	4		3
51	Sb	0.2	0.4		1.0
52	Te	0.01			
53	I	0.5			
55	Cs	3	1.5		1.1
56	Ba	425	1,220		180
57	La	30	100		12
58	Ce	60	150		20
59	Pr	8.2	17		4
60	Nd	28	55		7
62	Sm	6.0	11		5
63	Eu	1.2	1.0		1.1
64	Gd	5.4	5		4
65	Tb	0.9	0.6		0.8
66	Dy	3.0	2		4
67	Ho	1.2	0.5		1.3
68	Er	2.8	2		3
69	Tm	0.5	0.2		0.3
70	Yb	3.0	1		3
71	Lu	0.5	0.1		0.3
72	Hf	3	5.2		1.5
73	Ta	2	1.6		0.7
74	W	1.5	0.4		0.45
75	Re	0.001	0.0006		0.0004
76	Os	0.001	< 0.0001		0.0004
77	Ir	0.001	< 0.0001		0.0001
78	Pt	0.01	0.008		0.009
79	Au	0.004	0.005		0.005
80	Hg	0.08	0.2		0.2
81	Tl	0.5	1.3		0.13
82	Pb	13	49		8
83	Bi	0.2	0.1		0.2
90	Th	7.2	52		2.4
92	U	1.8	3.7		0.52

Mason (1966) より

表3.2.5 造岩鉱物一覧表

テクトケイ酸塩	ネソケイ酸塩
シリカ鉱物 長石族 準長石族 沸石族	カンラン石族 ヒューマイト族 ジルコン スフェーン ザクロ石族 珪線石 紅柱石 藍晶石 トパズ 十字石 クロリトイド
フィロケイ酸塩	ケイ酸塩以外の造岩鉱物
雲母族 スチルブノメレン パイロフィライト 滑石 蛇紋石 緑泥石 プレーナイト 粘土鉱物 グローコナイト	方解石 ドロマイト アラゴナイト コランダム ルチル スピネル族 磁鉄鉱 イルメナイト 赤鉄鉱 褐鉄鉱 ブルース石 リン灰石 ホタル石 黄鉄鉱 磁硫鉄鉱 グラファイト
イノケイ酸塩	
輝石族 珪灰石 バラ輝石 角閃石族	
ソロケイ酸塩およびサイクロケイ酸塩	
メリライト 緑簾石族 ローソン石 パンペリー石 ヴェスヴ石 緑柱石 コーディエライト 大隅石 電気石 斧石	

表3.2.6 カコウ岩類の割れ目系を充填している鉱物

土岐カコウ岩類	人形峠カコウ岩類	栗橋カコウ岩類	広島県、島根県下のカコウ岩類 <sup>1)</sup>
<p>〔ケイ酸塩鉱物〕</p> <p>(粘土鉱物)</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・スメクタイト</li> <li>・雲母粘土鉱物</li> <li>・カオリン</li> <li>・緑泥石</li> </ul>	<p>〔ケイ酸塩鉱物〕</p> <p>(粘土鉱物)</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・スメクタイト</li> <li>・雲母粘土鉱物</li> <li>・緑泥石</li> </ul> <p>(沸 石)</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・濁沸石</li> <li>・束沸石</li> </ul>	<p>〔ケイ酸塩鉱物〕</p> <p>(粘土鉱物)</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・(白色粘土)</li> <li>・緑泥石</li> </ul> <p>(沸 石)</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・濁沸石</li> <li>・束沸石</li> </ul> <p>(その他)</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・石英</li> <li>・緑簾石</li> <li>・プレーナイト</li> </ul>	<p>〔ケイ酸塩鉱物〕</p> <p>(粘土鉱物)</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・雲母粘土鉱物</li> <li>・スメクタイト</li> <li>・雲母／スメクタイト混合層鉱物</li> <li>・カオリン</li> <li>・カオリン／スメクタイト混合層鉱物</li> </ul> <p>(沸 石)</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・濁沸石</li> <li>・束沸石</li> </ul>
<p>〔炭酸塩鉱物〕</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・方解石</li> </ul>	<p>〔炭酸塩鉱物〕</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・方解石</li> <li>・ドロマイト</li> <li>・菱鐵鉱</li> <li>・霞石</li> </ul> <p>(その他)</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・黄鐵鉱</li> <li>・針鐵鉱</li> <li>・輝水鉛鉱</li> </ul>	<p>〔炭酸塩鉱物〕</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・方解石</li> </ul> <p>(その他)</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・(酸化鉄)</li> </ul>	

<sup>1)</sup> : 北川 (1985) , 粘土鉱物記述を主としており, 炭酸塩鉱物については, 不明。

各地域毎のデータは目的により分析精度が異なっており, 未同定の鉱物種の存在する可能性がある。

表3.2.7 起源を異にする天然水の水質 (ppm) (杉崎 (1963) を一部改変)

自然水 成分	河 川 水	循環性地下水	海 水	化 石 海 水
pH	6.9	7.0		7.1
SiO <sub>2</sub>	7.7	7.8	7	59
Fe	<0.03	<0.03	0.02	
Al			1.9	
Li			0.1	
Na	3.5	5.1	10,600	4,930
K	0.8	0.4	380	8.3
Mg	1.2	1.5	1,270	589
Ca	9.3	10.1	400	5,660
Sr	0.25		8	160
NH <sub>4</sub>	0.45	0.035	0.05	0.027
CO <sub>3</sub>	0.24	0.006		0.3
HCO <sub>3</sub>	30	8.4	140	12.5
CO <sub>3</sub>	7.1	1.6		1.8
SO <sub>4</sub>	8.1	3.6	2,650	993
F	0.20	0.1	1.4	
Cl	3.0	2.6	19,000	16,950
Br			65	56
I	0.0018	0.0001	0.05	
NO <sub>3</sub>	0.25	0.20	0.7	

注1) 化石海水は長崎県高島炭鉱坑内水での例

注2) 表中の空白部分に関する記載はない。

表3.2.8 既存の地下水組成データ

(単位: mg/l)

組成 岩種 タイプ	(1)カコウ岩タイプ	(2)結晶片岩タイプ	(3)新第三系タイプ (含む風化かく岩)	(4)古第三系タイプ	(5)海水
pH	7.1-8.5(CO <sub>2</sub> -poor) 6.0-6.5(CO <sub>2</sub> -rich)	6.0 - 6.7	中性~アルカリ	弱酸性~弱アルカリ	7.5 - 8.5
C l <sup>-</sup>	200 - 7,000	200 - 3,000	- 5	4,000 - 20,000	18,980
S O <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	- 10	- 20	- 20	none (-1,000)	2,650
H C O <sub>3</sub> <sup>-</sup>	30 - 3,000	1,500 - 3,000	100 - 150	1,000 - 6,000	140
F <sup>-</sup>	- 6	1 - 30	- 10		1.4
B r <sup>-</sup>	- 5	1 - 10		5 - 70	65
I <sup>-</sup>				10 - 100	
L i <sup>+</sup>	- 5	- 10			0.2
N a <sup>+</sup>	100 - 1,500	1,000 - 2,500	30 - 60		10,560
K <sup>+</sup>	3 - 20	10 - 100	- 3		380
C a <sup>2+</sup>	100 - 800	2 - 350	2 - 20	10 - 500	400
M g <sup>2+</sup>	- 80	1 - 100	- 1	10 - 700	1,270
F e (TOTAL)	- 30	- 10	- 1		3×10 <sup>-3</sup>
S r <sup>2+</sup>			- 1		8
S i O <sub>2</sub>	10 - 100	20 - 80	10 - 30	10 - 100	0.04 - 8
U (p.p.b)					2 - 3
O <sub>2</sub> (mL/l)					3 - 5
R (Ω-cm)			3,000 - 5,000		20 - 50

表3.2.9 深部地下水組成測定例 (Ochiai et al., 1988)

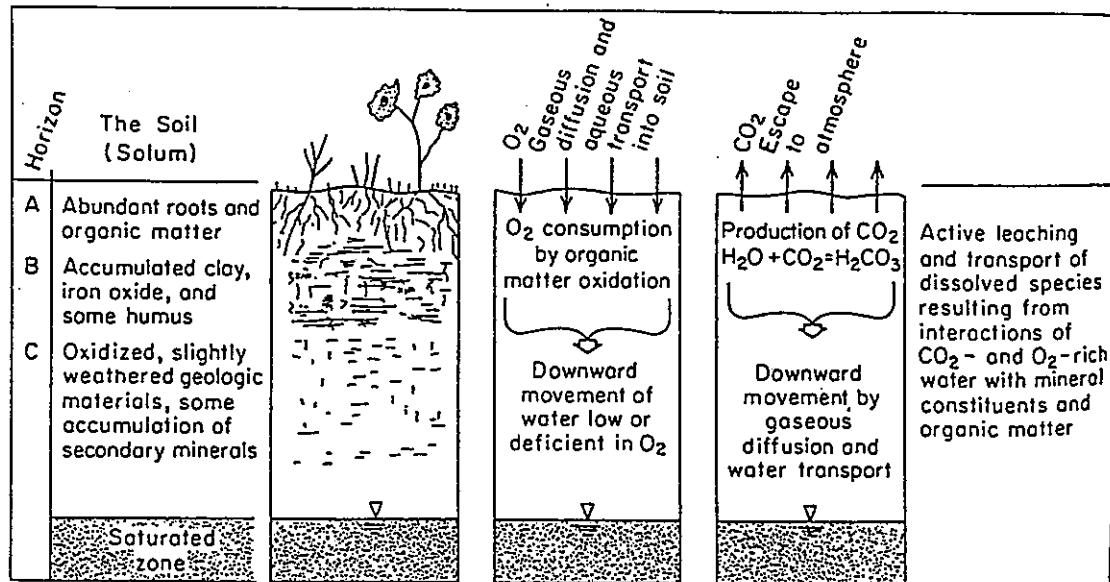
		東濃土岐夾炭累層
pH	(—)	8.6
Eh	(mV)	-300
Na <sup>+</sup>	(mg/l)	35
K <sup>+</sup>	(")	0.3
Ca <sup>2+</sup>	(")	5
Mg <sup>2+</sup>	(")	0.1
Cl <sup>-</sup>	(")	1
SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	(")	1
HCO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	(")	90
CO <sub>3</sub> <sup>2-</sup>	(")	—
Fe <sup>2+</sup>	(")	} 0.1 (total)
Fe <sup>3+</sup>	(")	
SiO <sub>2</sub>	(")	—
F <sup>-</sup>	(")	3

表3.2.10 東濃土岐夾炭累層にて観察された鉱物

---

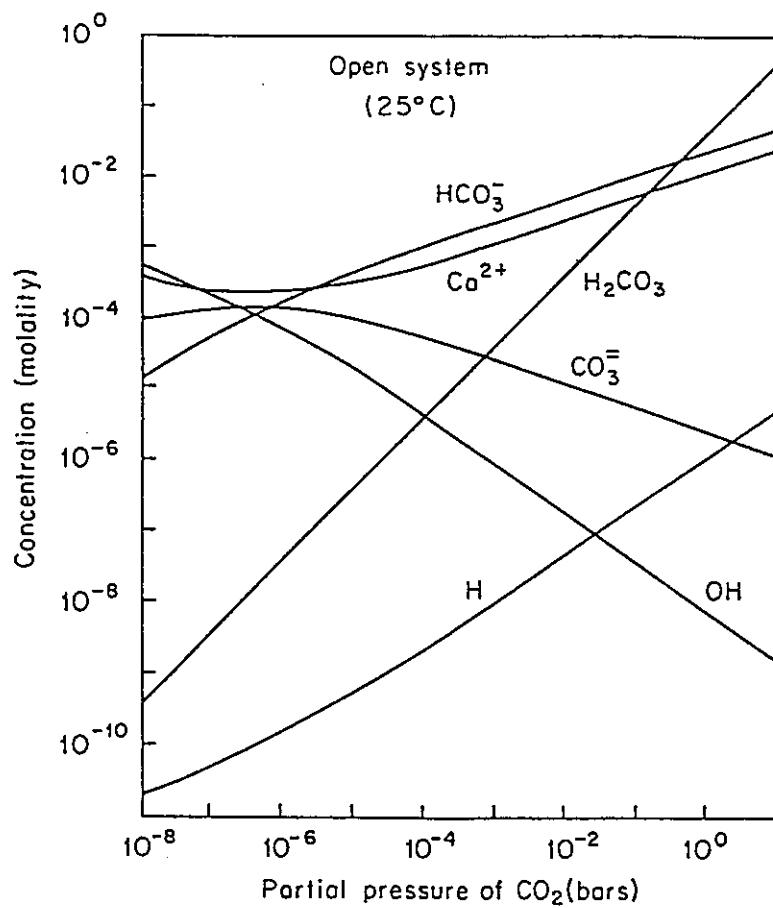
長石類（斜長石）  
石英  
粘土鉱物（モンモリロナイト）  
方解石  
石コウ  
ドロマイト  
黄鉄鉱  
沸石類（斜方沸石、斜長沸石）  
菱鐵鉱

---



Schematic representation of major hydrochemical processes in the soil zone of recharge areas.

図3.1.1 地下水供給域の土壤中で生ずる主要な化学反応  
(Freeze and Cherry (1979) による)



Dissolved species in water in equilibrium with calcite as a function of  $P_{\text{CO}_2}$ , open-system dissolution (after Guenther, 1975).

図3.1.2 開放系において方解石と平衡にある地下水中の化学種濃度

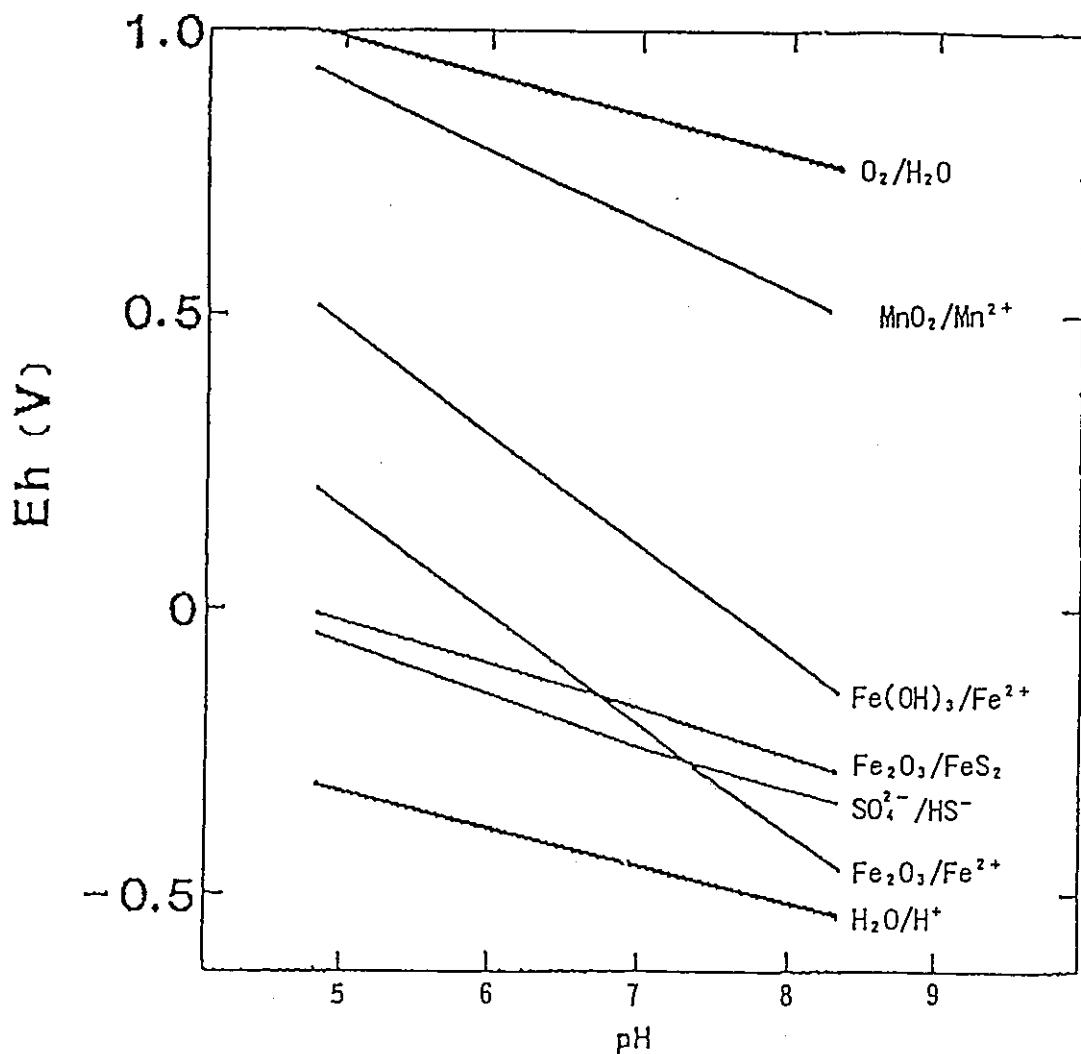


図3.1.3 天然水で考慮すべき酸化還元緩衝作用となりうる酸化還元反応  
(固相と溶液の境界は溶質の活量が $10^{-6}$ の場合の境界を示す(Drever, 1988))

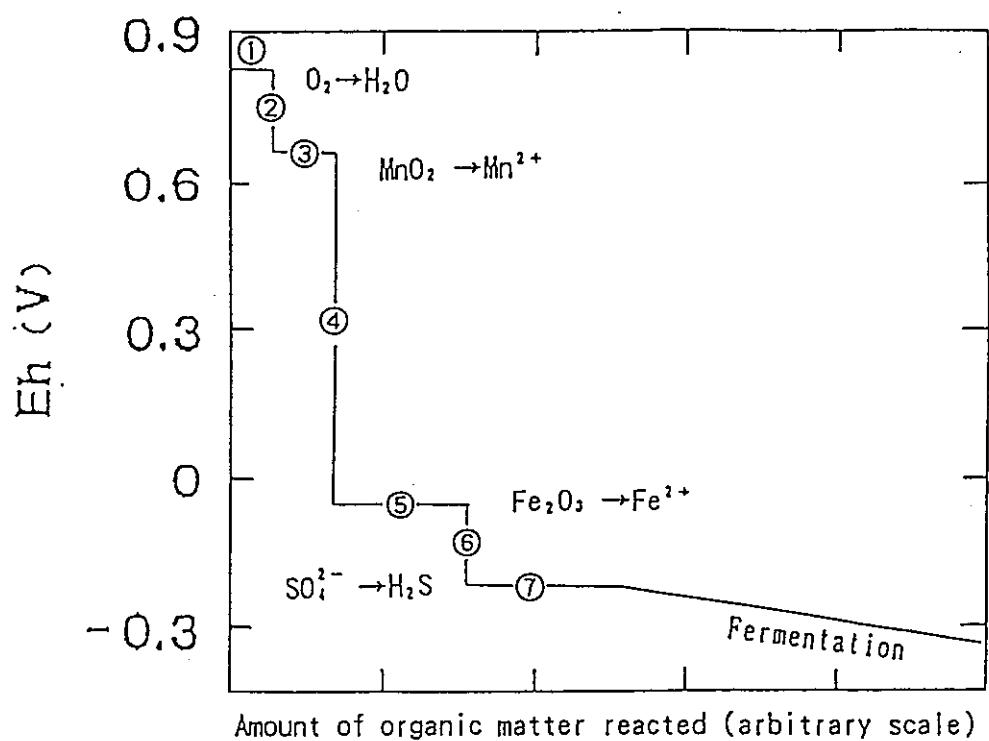


図3.1.4 有機物分解量を関数とした天然水中のEhの変化

(pHは7と仮定、図3.1.3のpH=7の断面に相当する(Drever, 1988))

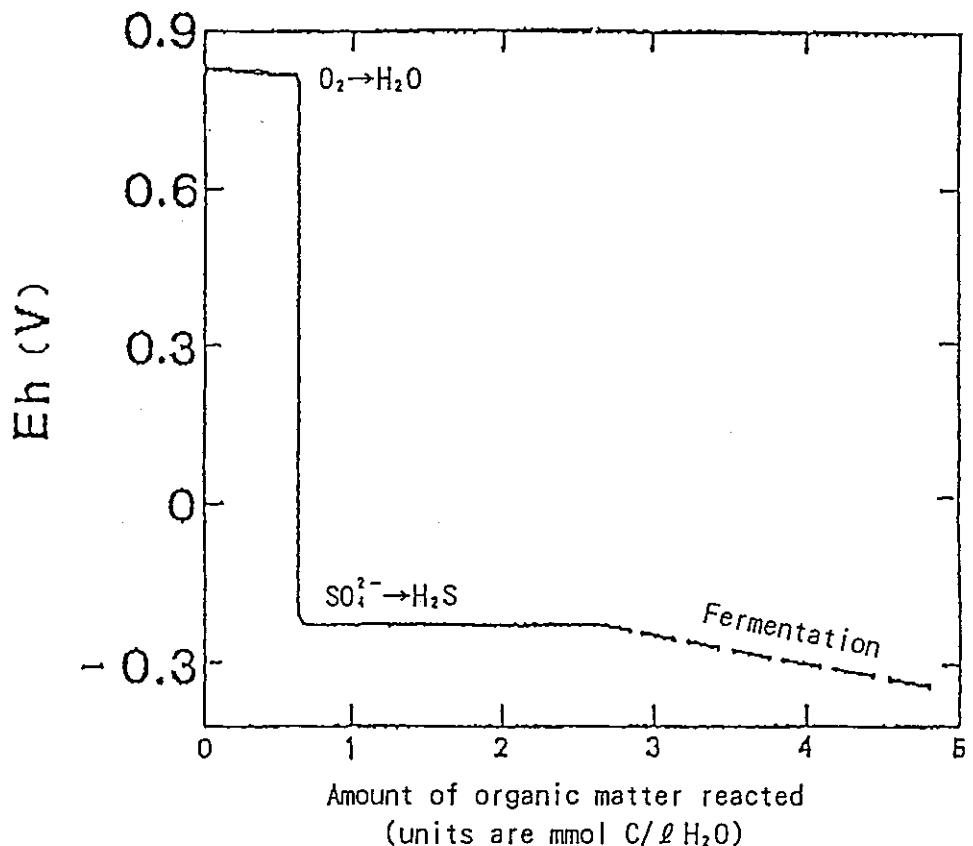
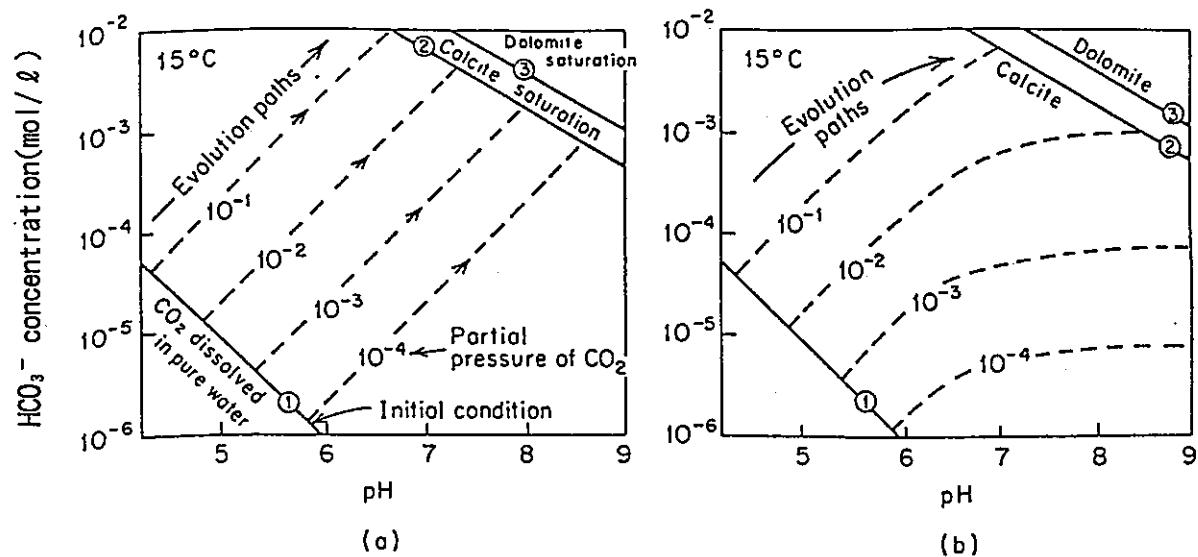
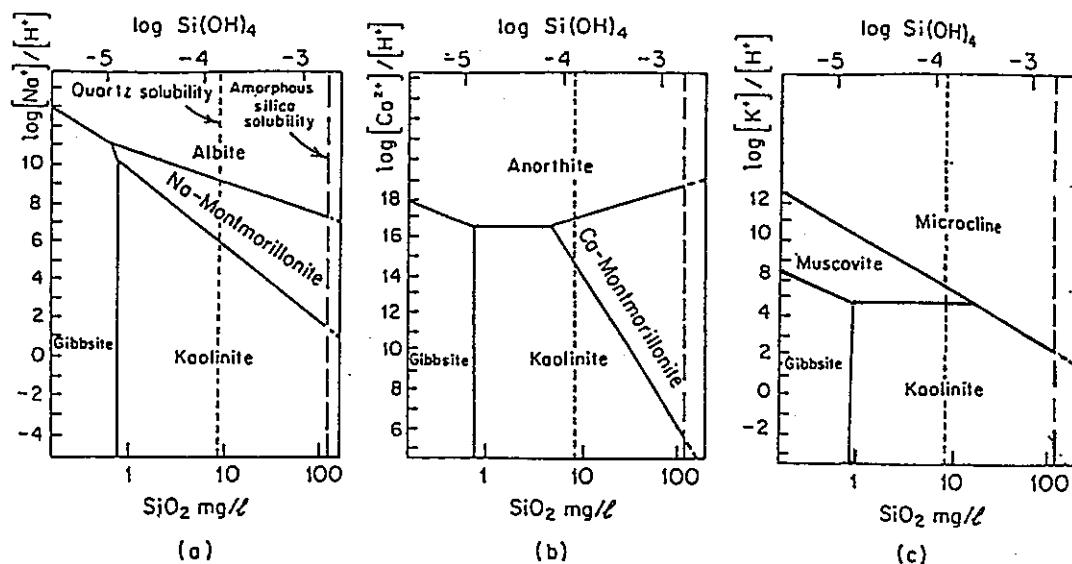


図3.1.5 マンガン・鉄を考慮しなくてよい系（例えば表層の付近の地下水など）での有機物分解量を関数とした天然水中のEhの変化  
(pHは7と仮定(Drever, 1988))



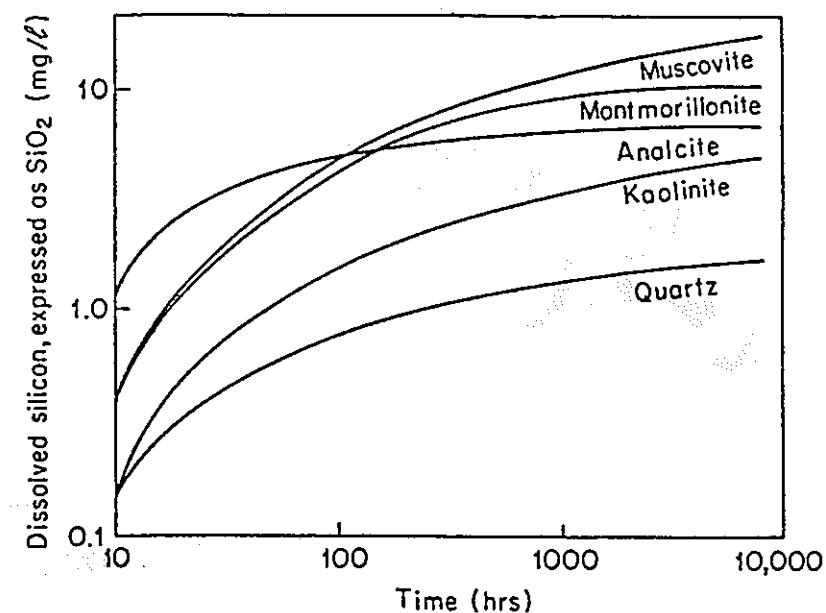
Chemical evolution paths for water dissolving calcite at 15°C.  
 (a) Open-system dissolution; (b) closed-system dissolution.  
 Line (1) represents the initial condition for the  $\text{CO}_2$  charged  
 water; line (2) represents calcite saturation; line (3) represents  
 dolomite saturation if dolomite is dissolved under similar condi-  
 tions.

図3.1.6 方解石を溶解する地下水組成の変遷過程 (Freeze and Cherry (1979)による)  
 ((a)開放系, (b)閉鎖系)



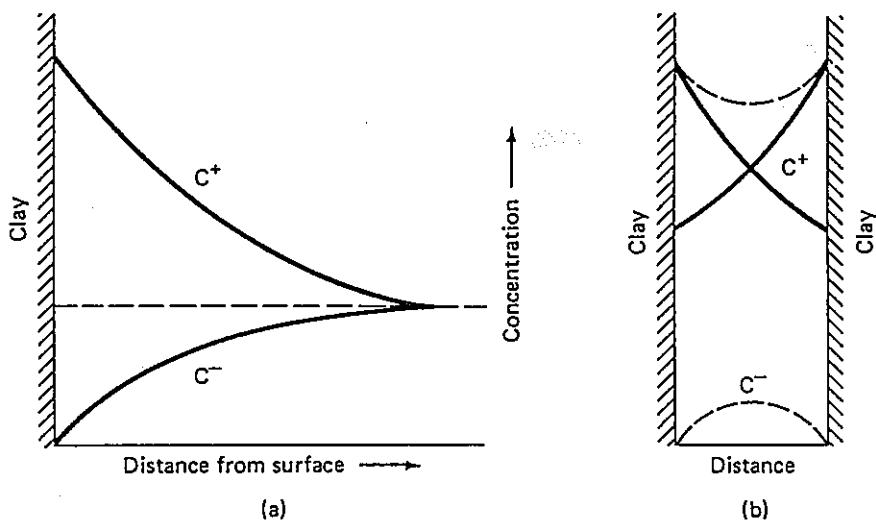
Stability relations for gibbsite, kaolinite, montmorillonite, muscovite, and feldspar at 25°C and 1 bar. (a) Gibbsite,  $\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot \text{H}_2\text{O}$ ; kaolinite,  $\text{Al}_2\text{Si}_2\text{O}_5(\text{OH})_4$ ; Na-montmorillonite,  $\text{Na}_{0.73}\text{Al}_{2.33}\text{Si}_{3.67}\text{O}_{10}(\text{CH})_2$ ; and albite,  $\text{NaAlSi}_3\text{O}_8$ . (b) Gibbsite; kaolinite; Ca-montmorillonite; and anorthite,  $\text{CaAl}_2\text{Si}_2\text{O}_8$ . (c) Gibbsite, kaolinite, muscovite, and microcline (after Tardy, 1971).

図3.1.7 アルミニノケイ酸塩鉱物の安定線図の例 (Freeze and Cherry (1979)による)



Release of silica during the dissolution of silicate minerals in distilled water at 25°C (after Bricker, 1967).

図3.1.8 種々のケイ酸塩鉱物の溶解による $\text{SiO}_2$ 濃度の経時変化



Concentrations of cations ( $C^+$ ) and anions ( $C^-$ ) (a) in the diffuse double layer of a single particle, and (b) in a pore between two closely approaching clay particles. Note how anions are excluded from the narrow pore.

図3.1.9 membrane - filtration における anion exclusionの概念図(Drever, 1988)

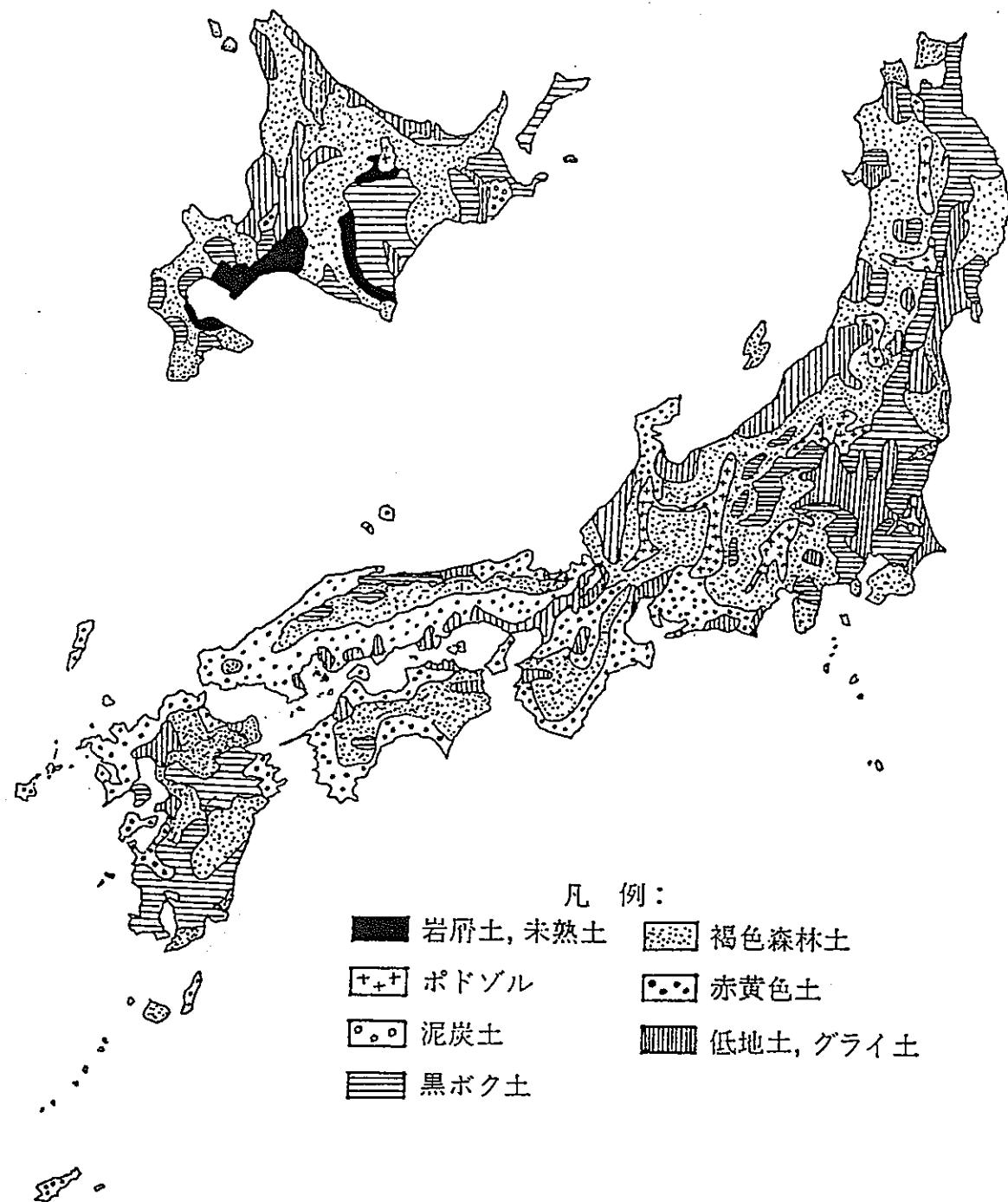


図3.2.1 我が国における土壤型の地理的分布図（松本（1989）による）

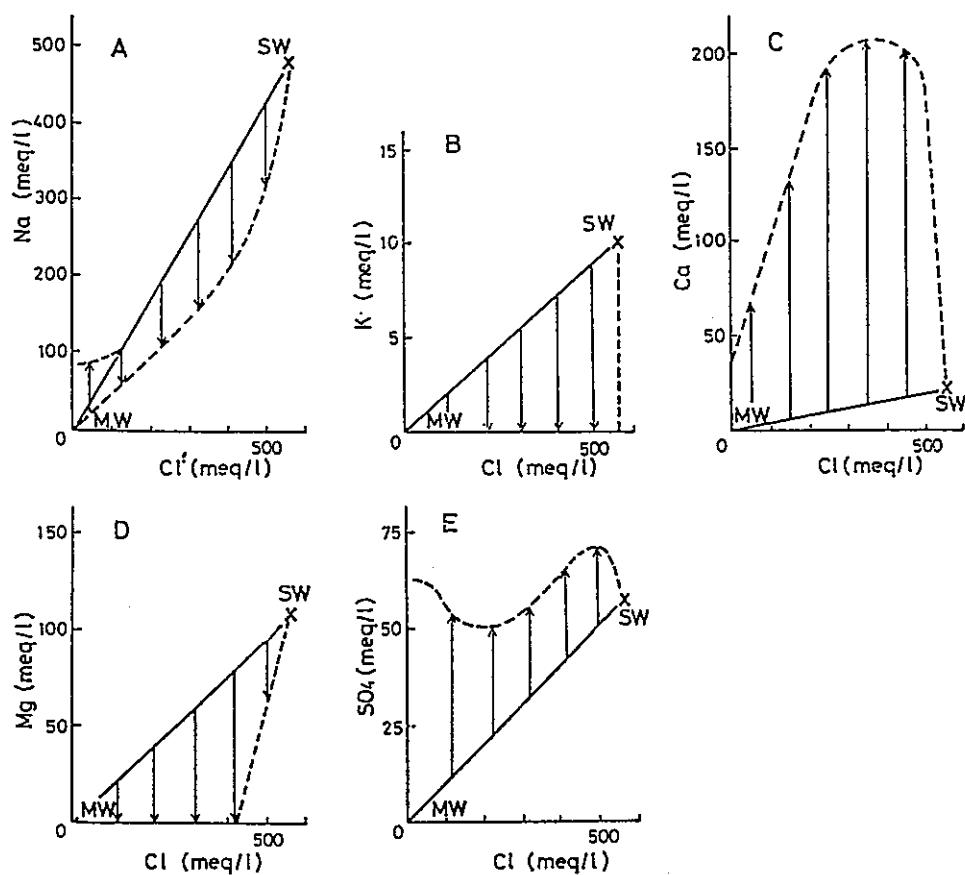


図3.2.2 岩石の反応による海水一天水混合水の化学組成の変化 (Seki et al. (1986) による)  
(SW: 海水, MW: 天水, 反応により矢印の方向へ変化)

#### 4. 地下水化学モデル

##### 4.1 モデル化の考え方

性能評価の観点から、地下水の主要な特性についてモデル化を行うため、3章において、これら特性を支配する一般的プロセスや我が国の地下水水質に関する化学的環境条件について述べた。ここではこれらに基づき、実際に地下水化学モデルを構築するための考え方について述べる。

###### 4.1.1 平衡論的アプローチ

地下水水質の生成機構に関する化学反応をモデルを用いて解釈する手法としては、平衡論的アプローチ及び速度論的アプローチの2通りがある。基本的には図4.1.1に基づき地下水流速、着目する地球化学反応の速度式及び速度定数データ、熱力学データ等を多岐に加味して評価を行なうべきである (Stumm and Morgan, 1981)。地下深部での地下水流速は一般に非常に遅いと考えられるため、地下水流れに沿った地層の構成物質（鉱物、ガス等）と地下水の化学的相互作用の時間は長くなることが予想される。このような場合、地層の構成物質と地下水の相互作用における反応は平衡論モデルで記述することが基本的に可能であると考えられる。

平衡論モデルは、種々の地層の構成物質と地下水の間で、閉鎖系の部分平衡が成立すると仮定して作られた地下水組成を支配する反応の組合せであり、このモデルを使えば地下水組成の鉛直方向の変化を計算することが可能である。

一方、速度論モデルについては実験室系の一部の単純な系については、評価が可能であるが、天然水のような複雑な系では地下水水質の変遷を念頭に置いたモデル化及びデータなどの情報は極めて少なく、熱力学的データを除き評価に足るデータの充実はない。

また、例えば3.2.3項に示されているように東濃土岐層の地下水の年代は約40年程度以上（瀬尾・武田, 1992）であり、最近の研究（水谷, 1992）によれば数千年～1万数千年とも言われており、このような知見を背景に平衡論モデルの妥当性について検討した結果（油井ほか, 1990；根山ほか, 1990），平衡論モデルを用いて原位置の地下水組成-鉱物情報の関係を整合性よく説明できることが示された。

以上より、モデリングにあたっては、地下水組成の有効な近似的評価が可能と考え、平衡論モデルを用いる事とした。

#### 4.1.2 重要な地下水特性を支配する地球化学反応の抽出

##### ① 地球化学反応の理解・抽出手順

- (a) 3.1節に述べた一般的に適用可能と考えられる理論や経験則に基づく主要な地球化学プロセスの抽出を行う。(3.1節 表3.1.1, 3.1.2, 3.1.3, 3.1.4, 3.1.7)
- (b) これまでに調査された既存の地下水分析結果、カコウ岩類の割れ目充填鉱物や堆積岩類に共通して観察される鉱物の種類、最新の深部地下水測定結果や対応する鉱物情報(3.2節参照)に基づき、必要に応じて地球化学計算を行い(a)の主要プロセスを考慮して現実的な地球化学プロセスの抽出を行う。

##### ② 抽出された重要な地下水特性(pH, Eh, イオン濃度)を支配するプロセス

①に基づき以下の主要なプロセスを抽出した。

- (a) イオン濃度； 主に地下水起源(降水／海水(化石海水含む))によりイオン濃度は大きく分けられるが、降水起源系の場合は造岩鉱物(アルミニノケイ酸塩鉱物)の風化の度合に依存する。(例：斜長石→カオリナイト)
- (b) pH； 主に造岩鉱物の風化の度合・順序に依存するが有機物(深部における有機物を含む)による還元作用にも依存する。
- (c) Eh(またはpe)； 主にFe, S, Cに関する酸化還元反応の寄与の度合(例：黄鉄鉱の溶解平衡、有機炭素の酸化反応)に依存する。

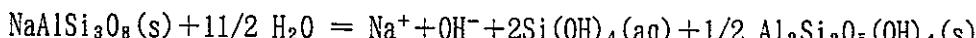
ここでEhとpeの関係は以下の通りである。

$$pe = \frac{F}{2.3RT} Eh$$

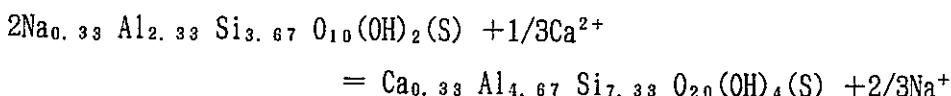
ここでF: ファラデー定数, R: ガス定数, T: 絶対温度

上記(a)～(c)に関与する代表的な地球化学プロセスの例として、3.1節より抜粋したもの以下に示す。

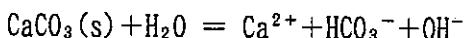
##### ◆ 曹長石の風化反応(主にpH及びイオン濃度に関与)



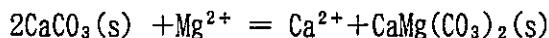
##### ◆ 粘土鉱物のイオン交換反応〔(例)Na-モンモリロナイトおよびCa-モンモリロナイト間のイオン交換反応、主にイオン濃度に関与〕



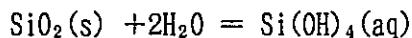
##### ◆ 方解石の溶解・生成(主にpH及びイオン濃度に関与)



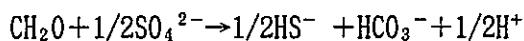
◆ 方解石のドロマイト化（主にイオン濃度に関与）



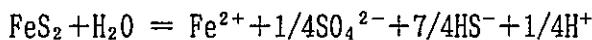
◆ 石英の溶解（主にSi濃度に関与）



◆ 有機物による硫酸の還元反応（pH, Eh, イオン濃度に関与）



◆ 硫化鉱物（黄鉄鉱）の酸化還元反応（主にEhに関与）



これらの反応（造岩鉱物の風化、炭酸塩鉱物の溶解、有機物の寄与する酸化還元反応、Fe, S鉱物の酸化還元反応等）の組合せは現実的な条件のもとでは種々の組合せが考えられる。

図4.1.2に、以上に述べた地下水の化学的性質を支配する地球化学プロセスを抽出した手順を示した。

#### 4.1.3 モデル地下水のタイプ

実際のモデル化にあたっては、3.2.3.2で述べたように、約10,000件におよぶ我が国における既存の地下水（浅層部、深部）組成調査結果及び深部地下水組成測定例などから、pH, Eh, イオン濃度について、明らかになっている事実を参考に、以下のような範囲を対象にモデル地下水を類型化する事とした。

##### (1) pH及びイオン濃度

pHに関しては、温泉等の分析例を除き、弱酸性から弱アルカリ性の範囲内にあり、 $\text{HCO}_3^-$ ,  $\text{Cl}^-$ ,  $\text{Na}^+$ ,  $\text{Ca}^{2+}$ の各濃度については大きなばらつきが見られる。この様なpH及び主要イオン濃度の分布の拡がりは、主として降水もしくは海水といった起源の相異と、種々の地下水一岩体間の相互作用の進展の程度により説明されるものと考えられ、この範囲の定量化を4.1.2項に基づき試みることとした。

##### (2) 酸化還元電位 (Eh)

実際の深部地下水に対するEhの測定例は限られており、新たに東濃鉱山で連続的なモニタリングにより測定された例等を除いては、その精度を定量的に検討することは困難である。東濃鉱山での実測例に示される様に、深部地下水のEhは、二価鉄及び三価鉄イオンについての酸化還元平衡、もしくは $\text{SO}_4^{2-}$ と $\text{H}_2\text{S}$ または $\text{HS}^-$ についての酸化還元平衡に対応する極めて低いものとなることが予想される。

さらに、現状の知見では、降水起源の地下水については、3.2.1項に示すように、地下水を還元状態に変化させる土壌が日本全土に広く分布していること、有機物の分解が

溶存酸素を減少させ $\text{HCO}_3^-$ 濃度を上昇させること、及び一般に深い地下水ほど地層との接触時間が長く、化学的相互作用が進んでいると推定されること（杉崎・柴田、1961）から、還元剤として作用し得る有機物、二価鉄鉱物や硫化鉱物の寄与が極めて小さくなることは考えにくく、酸化状態にある深部地下水の存在を平衡論のもとで説明する事には困難がある。しかしながら、実際の深部地下水の酸化還元電位の測定例が限られていることや、平衡論の成立の妥当性に関する問題も含め、地下水の還元状態を完全に証明する事も困難である事から、ここでは仮想的に酸化性の地下水も含めた種々のEhの範囲の定量化を4.1.2項に基づき試みることとした。

一方、 $\text{Cl}^-$ を指標とした純粋な海水起源の地下水（塩水くさび、降水・海水混合水、大気下での採水などを除く）は、表3.2.8で示すように $\text{SO}_4^{2-}$ の濃度がほとんど未検出であり、これは、閉鎖された環境下で有機物による還元反応が十分進行し、還元状態が維持されていることを示している（本島、1962）。従って、純水な海水起源の酸化性地下水の存在は、極めて考えにくいことから、この種の地下水は評価の対象から除外した。

今回のモデルの構築にあたっては、岩種に基づく地下水組成の設定ではなく、地下水の代表的な地球化学的変遷プロセスをモデル化することによって、我が国の深部地下水組成を性能評価上の重要特性に基づいて設定することを試みた。ここでは、核種移行評価を行う上で重要な地下水の化学的条件として、3つのパラメータ、すなわちpH、Eh、イオン濃度を軸として、その現実的な組合せについて、基本的に4種類の還元性地下水を、また仮想的地下水として1種類の酸化性地下水を設定することとした。計5種類の地下水特性の設定を以下に示す。

- ・ 降 水 系 高 pH 型 地 下 水
- ・ 降 水 系 低 pH 型 地 下 水
- ・ 海 水 系 高 pH 型 地 下 水
- ・ 海 水 系 低 pH 型 地 下 水
- ・ 降 水 系 高 pH 型 地 下 水（仮想的酸化性地下水）

ここで”降水”は降水起源を、また”海水”は海水起源を意味する。また、高pH、低pHは核種移行評価の観点から見た相対的な表現である。

このような地下水特性の設定の概念を図4.1.3に示す。

なお、地下水の起源としては、他にマグマ起源のものも考えられるが、現在のところマグマ水そのものの分布、特性、その生成の過程などモデル化のための必要な情報が十分でないため、この種の地下水は今回の検討対象からは除外した。

#### 4.2 地下水化学モデルの作成

以上の考え方に基づき、5種類の地下水水質形成モデルの作成を行う。

##### 4.2.1 地下水の化学的変遷モデルの作成手順

地下水の化学的変遷モデルの作成は図4.2.1に示す様に、まず起源（降水、海水）を決めた。次に、地下水-岩石反応に関してpH, Eh, イオン濃度に影響を及ぼすと考えられるプロセスと反応の生起順序を、土壤中における反応、カコウ岩類や堆積岩類に共通して観察される鉱物の種類や原位置の鉱物情報を参照しながら抽出した。

##### 4.2.2 モデル化

各起源ごとのモデル化の詳細を以下に示す。

###### (1) 降水起源の場合

###### 1) 大気中の水-ガス反応

大気中に含まれるCO<sub>2</sub>ガスを吸収することにより、HCO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度及びpHが変化する。



###### 2) 有機物の腐敗によるCO<sub>2</sub>ガス吸収反応

土壤中のCO<sub>2</sub>ガス組成は、大気のCO<sub>2</sub>ガス組成とまったく異なっており、有機物の腐敗や植物の根の呼吸のためにCO<sub>2</sub>ガス分圧は大気中より数百倍高くなる(Stumm and Morgan, 1981)。その結果、HCO<sub>3</sub><sup>-</sup>が高くなる傾向にある。CO<sub>2</sub>ガスの主たる供給源は、有機物の腐敗であり、有機物をCH<sub>2</sub>Oとして表せば



の反応および(1)式より HCO<sub>3</sub><sup>-</sup>が増加する。

###### 3) 岩体中での水-岩石(含有機物)反応

水-岩石反応としては、pH, Eh, イオン濃度に影響を及ぼすと考えられる溶解、風化、酸化還元反応やこれらの生起順序を、地質構造、鉱物情報等も参照しながらモデル化を行った。

設定した降水系地下水は高pH型、低pH型、高pH型(仮想的酸化性地下水)の3種類の地下水であり、以下にそのモデル化について順次説明することとする。なお、以下の地下水のモデル化において示した支配的反応に現れる鉱物種は、各タイプの地下水系における典型例である。

###### ① 降水系高pH型の地下水

岩体中に浸透した地下水と岩石の反応で考慮した鉱物種は、以下の要領で選定した。

- (a) 日本の堆積岩及びカコウ岩類の割れ目系で一般に出現し得る鉱物種を選出する。  
ここでは3.2.2.4にて調査した結果を引用する。
- (b) (a)でリストアップされた鉱物種の中から、pH, Eh, イオン濃度を規定する化学反応を抽出した。抽出にあたっては、3.1節で抽出された地球化学プロセス(表3.1.1, 3.1.2, 3.1.3, 3.1.4, 3.1.7)に基づいた。(a)～(b)についてまとめたものを表4.2.1に示す。各pH, Eh, イオン濃度の支配的反応は以下の様に考えた。

pH : 土壤中の有機物の腐敗によって生成したCO<sub>2</sub>ガスの水溶液による吸収  
及びアルバイトとカオリナイト間の化学平衡

Eh, SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>, Fe<sup>2+</sup> : 黄鉄鉱と水溶液間の酸化還元平衡

HCO<sub>3</sub><sup>-</sup> : 土壤中の有機物の腐敗によって生成したCO<sub>2</sub>ガスの水溶液による吸収

Ca<sup>2+</sup> : 方解石と水溶液間の溶解平衡

SiO<sub>2</sub> : 石英と水溶液間の溶解平衡

Na<sup>+</sup> : アルバイトとカオリナイト間の化学平衡

K<sup>+</sup> : 白雲母と水溶液間の溶解平衡

## ② 降水系低pH型の地下水

岩体中に浸透した地下水と岩石の反応で考慮した鉱物種の選定手順は、基本的に降水系高pH型と同じである。鉱物選定のまとめを表4.2.2に示す。

各pH, Eh, イオン濃度の支配的反応は以下の様に考えた。

pH : 未風化帯における有機物による酸化性化学種(溶存酸素, 三価鉄イオン等)の還元反応

Eh : 未風化帯における有機物による酸化性化学種(溶存酸素, 三価鉄イオン等)の還元反応および磁鉄鉱と水溶液間の酸化還元平衡

Ca<sup>2+</sup> : 弱風化帯における方解石と水溶液間の溶解平衡

Fe : 未風化帯における磁鉄鉱と水溶液間の酸化還元平衡

Na<sup>+</sup> : 強風化帯におけるアルバイトとカオリナイト間の化学平衡

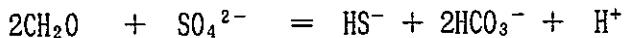
SiO<sub>2</sub> : 石英と水溶液間の溶解平衡

HCO<sub>3</sub><sup>-</sup> : 未風化帯における有機物による酸化性化学種(溶存酸素, 三価鉄イオン等)の還元反応

## (2) 海水起源の場合

海水起源の出発溶液は、一般的な海水組成とした。

本検討では、海水中で認められる $\text{SO}_4^{2-}$ が海水起源の地下水では、例えば3.2.3.2で述べたように、古第三系タイプの地下水にはほとんど認められること（表3.2.8の古第三系タイプ参照），及びこれら地下水の多くが、炭田・油田地帯によく見られるところから $\text{SO}_4^{2-}$ の有機物による還元反応を下式のように仮定した。



反応させる有機炭素量は、（表層水の溶解有機炭素濃度）－（深部地下水の溶解有機炭素濃度）（Drever, 1988）等より推定する事も可能であるが、ここでは上記反応式から化学量論的に反応させるべき有機炭素量を算出した。

海水系地下水の設定は、高pH型、低pH型の2種類の地下水であり、これらのモデル化について順次説明することとする。なお、以下の地下水のモデル化において示した支配的反応に現れる鉱物種は、各タイプの地下水系における典型例である。

## (1) 海水系高pH型の地下水

岩石-海水反応で考慮した鉱物種の選定手順は、基本的に降水系地下水と同じである。

鉱物種選定のまとめを表4.2.3に示す。

各pH, Eh, イオン濃度の支配的反応は以下の様に考えた。

pH,  $\text{K}^+$  : カリ長石と白雲母間の化学平衡

Eh,  $\text{HCO}_3^-$ ,  $\text{SO}_4^{2-}$  : 有機物による $\text{SO}_4^{2-}$ の還元反応

$\text{Ca}^{2+}$ ,  $\text{Mg}^{2+}$  : 方解石とドロマイト間の化学平衡

$\text{SiO}_2$  : 石英と水溶液間の溶解平衡

$\text{Na}^+$ ,  $\text{Cl}^-$  : 海水組成を維持

## (2) 海水系低pH型の地下水

岩石-海水反応で考慮した鉱物種の選定手順は、基本的に降水系地下水と同じである。

鉱物種選定のまとめを表4.2.4に示す。

各pH, Eh, イオン濃度の支配的反応は以下の様に考えた。

pH, Eh,  $\text{HCO}_3^-$ ,  $\text{SO}_4^{2-}$  : 有機物による $\text{SO}_4^{2-}$ の還元反応

$\text{Ca}^{2+}$ ,  $\text{Mg}^{2+}$  : ドロマイトと水溶液間の溶解平衡

$\text{K}^+$  : 白雲母と水溶液間の溶解平衡

$\text{SiO}_2$  : 石英と水溶液間の溶解平衡

$\text{Na}^+$ ,  $\text{Cl}^-$  : 海水組成を維持

(3) 仮想的地下水（降水系高pH型地下水（仮想的酸化性地下水））

降水系高pH型地下水（仮想的酸化性地下水）は、仮想的な地下水として土壤中の $\text{CO}_2$ ガス吸収及び地層中のFe, S, Cを含む鉱物等の溶解による酸化還元反応を無視したものであり、結果としてEhが高くなる様にモデル化したものである。ここでは、降水系高pH型で考慮した地球化学プロセスから土壤中の $\text{CO}_2$ ガス吸収、黄鉄鉱の溶解平衡を除いてモデル化した。

$\text{Ca}^{2+}$ ,  $\text{HCO}_3^-$  : 方解石と水溶液間の溶解平衡

$\text{SiO}_2$  : 石英と水溶液間の溶解平衡

$\text{Na}^+$ , pH : アルバイトとカオリナイト間の化学平衡

$\text{K}^+$  : 白雲母と水溶液間の溶解平衡

参考文献

- Drever, J. I. (1988); *The Geochemistry of Natural Waters*, 2nd ed., Prentice Hall, Inc.,  
A Division of Simon & Schuster Englewood Cliffs, New Jersey
- 水谷義彦・瀬尾俊弘・太田久仁雄・中井信之・村井康浩(1992) ; 岐阜県東濃鉱山深層地下水の  
 $^{14}\text{C}$ 年代, シンポジウム論文集『加速器質量分析と炭素同位体の学際的応用』, 名古  
屋大学年代測定資料研究センター, 加速器年代測定実験室, pp. 159-168
- 本島公司 (1962) ; 化石水の産状と地球化学, 鉱業会誌, 78, 205.
- 根山敦史・梅木博之・油井三和・瀬尾俊弘・武田精悦・佐々木憲明(1990); 実測された地下水  
Ehの地球化学モデルによる評価, 日本原子力学会 1990年 秋の大会予稿集, pp. 720
- 瀬尾俊弘・武田精悦 (1990); 東濃地域における深部地下水の地球化学的特性について  
日本原子力学会 1990年 秋の大会予稿集, pp. 718
- Stumm, W. and Morgan, J. J. (1981); *Aquatic Chemistry*, 2nd ed., A Wiley-Interscience,  
USA, pp. 112-117
- 杉崎隆一・柴田 賢 (1961) ; 地下水の地球化学的研究 (第2版), 地質学雑誌, 67(791),  
pp. 427~439
- 油井三和・武田精悦・Wanner, H. (1990) ; NEA TDBウランデータベースの東濃鉱山ナチュラ  
ル・アナログデータによる有効性の予察的確認, 日本原子力学会 1990年秋の大会予  
稿集, pp. 721

表4.2.1 降水系高pH型の鉱物選定

一般的に日本の堆積岩で見られる鉱物種	石膏, 炭酸塩鉱物, リン灰石, グローコナイト, 黄鉄鉱, 沸石, 緑泥石, アルバイト, 正長石, 微斜カリ長石, 粘土鉱物, 石英, 白雲母, 電気石, ジルコン, ルチル, ブルカイト, アナテース
一般的に日本のカコウ岩類の割れ目系で見られる鉱物種	粘土鉱物, 沸石類, 炭酸塩鉱物, 石英, 黄鉄鉱, ゲータイト, 輝水鉛鉱, 酸化鉄鉱物
モデリングで仮定した地球化学反応典型例	<ul style="list-style-type: none"> <li>・石英の溶解 (表3.1.1) <math>\text{SiO}_2 + 2\text{H}_2\text{O} = \text{Si(OH)}_4(\text{aq})</math></li> <li>・方解石の溶解 (表3.1.1) <math>\text{CaCO}_3 = \text{Ca}^{2+} + \text{CO}_3^{2-}</math></li> <li>・黄鉄鉱の酸化還元反応 (表3.1.3 (18), (24) 等) <math>4\text{FeS}_2 + 4\text{H}_2\text{O} = 4\text{Fe}^{2+} + \text{SO}_4^{2-} + 7\text{HS}^- + \text{H}^+</math></li> <li>・アルミノケイ酸塩鉱物の風化反応 [アルバイト-ガオリナイト] (表3.1.4) <math>2\text{NaAlSi}_3\text{O}_8 + 2\text{H}^+ + 9\text{H}_2\text{O} = \text{Al}_2\text{Si}_2\text{O}_5(\text{OH})_4 + 2\text{Na}^+ + 4\text{Si(OH)}_4(\text{aq})</math></li> <li>・白雲母の溶解 <math>\text{KAl}_3\text{Si}_3\text{O}_{10}(\text{OH})_2 = \text{K}^+ + 3\text{Al}^{3+} + 3\text{Si(OH)}_4(\text{aq}) - 10\text{H}^+</math></li> </ul>
モデリングで採用した典型鉱物例 (下線の場合)	アルバイト, ガオリナイト 方解石, 石英, 白雲母, 黄鉄鉱

表4.2.2 降水系低pH型の鉱物選定

	風化帯		未風化帯
	強風化帯	弱風化帯	
一般的に日本の堆積岩で見られる鉱物種	石膏, 炭酸塩鉱物, リン灰石, グローコナイト, 黄鉄鉱, 沸石, 緑泥石, アルバイト, 正長石, 微斜カリ長石, 粘土鉱物, 石英, 白雲母, 電気石, ジルコン, ルチル, ブルカイト, アナテース		
一般的に日本のカコウ岩類の割れ目系で見られる鉱物種	(二次鉱物) 粘土鉱物, 沸石類, 炭酸塩鉱物, 石英, 黄鉄鉱, データイト, 輝水鉛鉱, 酸化鉄鉱物		(初生鉱物) 石英, アルカリ長石, 斜長石, 雲母類, 磁鉄鉱, リン灰石, ジルコン, 白雲母, 黒雲母, 角閃石, チタン鉄鉱, 硫化鉱物
モデリングで仮定した 地球化学反応典型例	<ul style="list-style-type: none"> <li>・強風化帯 ・アルミニケイ酸塩鉱物の風化反応 [アルバイト-斜長石] (表3.1.4)</li> <li>・弱風化帯 ・石英の溶解 (表3.1.1) ・方解石の溶解 (表3.1.1) ・磁鉄鉱の溶解 ・アルバイトの溶解</li> <li>・未風化帯 ・石英の溶解 (表3.1.1) ・磁鉄鉱の溶解 ・有機物(<math>\text{CH}_4</math>)の作用 (表3.1.3) ・アルバイトの溶解</li> </ul>	$2\text{NaAlSi}_3\text{O}_8 + 2\text{H}^+ + 9\text{H}_2\text{O} = \text{Al}_2\text{Si}_2\text{O}_5(\text{OH})_4 + 2\text{Na}^+ + 4\text{Si(OH)}_4(\text{aq})$ $\text{SiO}_2 + 2\text{H}_2\text{O} = \text{Si(OH)}_4(\text{aq})$ $\text{CaCO}_3 = \text{Ca}^{2+} + \text{CO}_3^{2-}$ $\text{Fe}_3\text{O}_4 = \text{Fe}^{2+} + 2\text{Fe}^{3+} + 4\text{H}_2\text{O} - 8\text{H}^+$ $\text{NaAlSi}_3\text{O}_8 + 4\text{H}_2\text{O} = \text{Na}^+ + \text{Al}^{3+} + 3\text{Si(OH)}_4(\text{aq}) - 4\text{H}^+$ $\text{SiO}_2 + 2\text{H}_2\text{O} = \text{Si(OH)}_4(\text{aq})$ $\text{Fe}_3\text{O}_4 = \text{Fe}^{2+} + 2\text{Fe}^{3+} + 4\text{H}_2\text{O} - 8\text{H}^+$ $2\text{CH}_2\text{O} + \text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{CH}_4 + \text{HCO}_3^- + \text{H}^+$ $\text{NaAlSi}_3\text{O}_8 + 4\text{H}_2\text{O} = \text{Na}^+ + \text{Al}^{3+} + 3\text{Si(OH)}_4(\text{aq}) - 4\text{H}^+$	
モデリングで採用した典型鉱物例(下線の場合)	アルバイト, カオリナイト	方解石 アルバイト 石英 磁鉄鉱	アルバイト 磁鉄鉱 石英 有機炭素

表 4.2.3 海水系高pH型の鉱物選定

一般的に日本の堆積岩で見られる鉱物種	石膏, 炭酸塩鉱物, リン灰石, グローコナイト, 黄鉄鉱, 沸石, 緑泥石, アルバイト, 正長石, 微斜カリ長石, 粘土鉱物, <u>石英</u> , <u>白雲母</u> , 電気石, ジルコン, ルチル, ブルカイト, アナヂース
一般的に日本のカコウ岩類の割れ目系で見られる鉱物種	粘土鉱物, 沸石類, 炭酸塩鉱物, <u>石英</u> , 黄鉄鉱, ゲータイト, 輝水鉛鉱, 酸化鉄鉱物
モデリングで仮定した地球化学反応典型例	<ul style="list-style-type: none"> <li>・石英の溶解 (表3.1.1) <math>\text{SiO}_2 + 2\text{H}_2\text{O} = \text{Si(OH)}_4(\text{aq})</math></li> <li>・方解石のドロマイトイ化 (表3.1.7) <math>2\text{CaCO}_3 + \text{Mg}^{2+} = \text{Ca}^{2+} + \text{CaMg}(\text{CO}_3)_2</math></li> <li>・アルバイトの溶解 <math>\text{NaAlSi}_3\text{O}_8 + 4\text{H}_2\text{O} = \text{Na}^+ + \text{Al}^{3+} + 3\text{Si(OH)}_4(\text{aq}) - 4\text{H}^+</math></li> <li>・アルミノケイ酸塩鉱物の風化反応 <math>3\text{KAlSi}_3\text{O}_8 + 2\text{H}_2\text{CO}_3 + 12\text{H}_2\text{O} = 2\text{K}^+ + 2\text{HCO}_3^- + 6\text{Si(OH)}_4(\text{aq}) + \text{KAl}_3\text{Si}_3\text{O}_{10}(\text{OH})_2</math></li> <li>・<math>\text{SO}_4^{2-}</math> の還元反応 (表3.1.3, 3.1.7) <math>2\text{CH}_2\text{O} + \text{SO}_4^{2-} \rightarrow \text{HS}^- + 2\text{HCO}_3^- + \text{H}^+</math></li> </ul>
モデリングで採用した典型鉱物例（下線の場合）	石英, ドロマイトイ, 方解石, カリ長石, 白雲母, アルバイト, 有機炭素

表4.2.4 海水系低pH型の鉱物選定

一般的に日本の堆積岩で見られる鉱物種	石膏, 炭酸塩鉱物, リン灰石, グローコナイト, 黄鉄鉱, 沸石, 緑泥石, アルバイト, 正長石, 微斜カリ長石, 粘土鉱物, <u>石英</u> , <u>白雲母</u> , 電気石, ジルコン, ルチル, ブルカイト, アナテース
一般的に日本のカコウ岩類の割れ目系で見られる鉱物種	粘土鉱物, 沸石類, <u>炭酸塩鉱物</u> , <u>石英</u> , 黄鉄鉱, ゲータイト, 輝水鉛鉱, 酸化鉄鉱物
モデリングで仮定した地球化学反応典型例	<ul style="list-style-type: none"> <li>・石英の溶解 (表3.1.1) <math>\text{SiO}_2 + 2\text{H}_2\text{O} = \text{Si(OH)}_4(\text{aq})</math></li> <li>・ドロマイトの溶解 (表3.1.1) <math>\text{CaMg}(\text{CO}_3)_2 = \text{Ca}^{2+} + \text{Mg}^{2+} + 2\text{CO}_3^-</math></li> <li>・白雲母の溶解 <math>\text{KAl}_3\text{Si}_3\text{O}_{10}(\text{OH})_2 = \text{K}^+ + 3\text{Al}^{3+} + 3\text{Si(OH)}_4(\text{aq}) - 10\text{H}^+</math></li> <li>・<math>\text{SO}_4^{2-}</math> の還元反応 (表3.1.3, 3.1.7) <math>2\text{CH}_2\text{O} + \text{SO}_4^{2-} \rightarrow \text{HS}^- + 2\text{HCO}_3^- + \text{H}^+</math></li> </ul>
モデリングで採用した典型鉱物例（下線の場合）	ドロマイト, 石英, 白雲母, 有機炭素

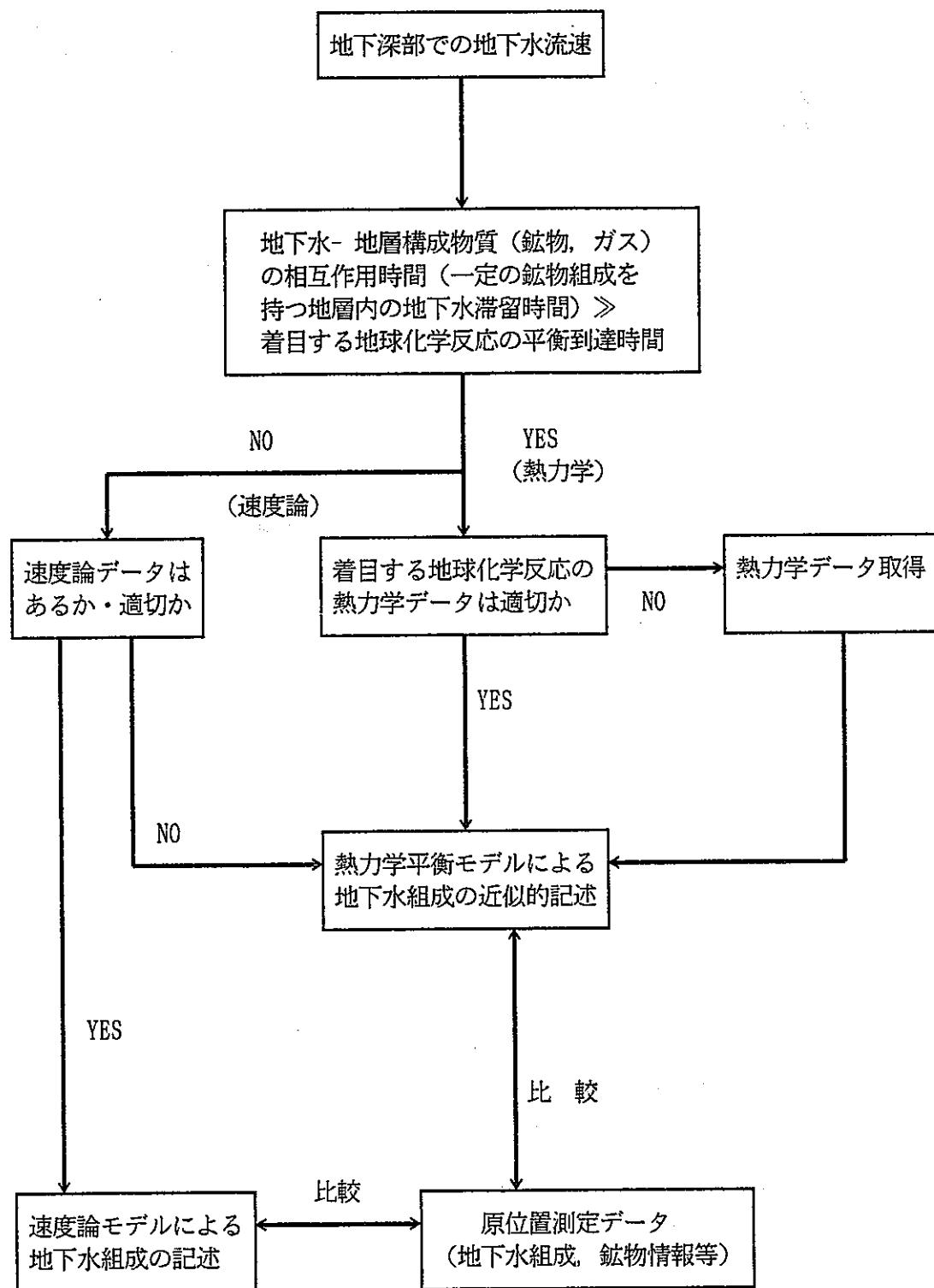


図4.1.1 地下水化学モデルの選定フロー

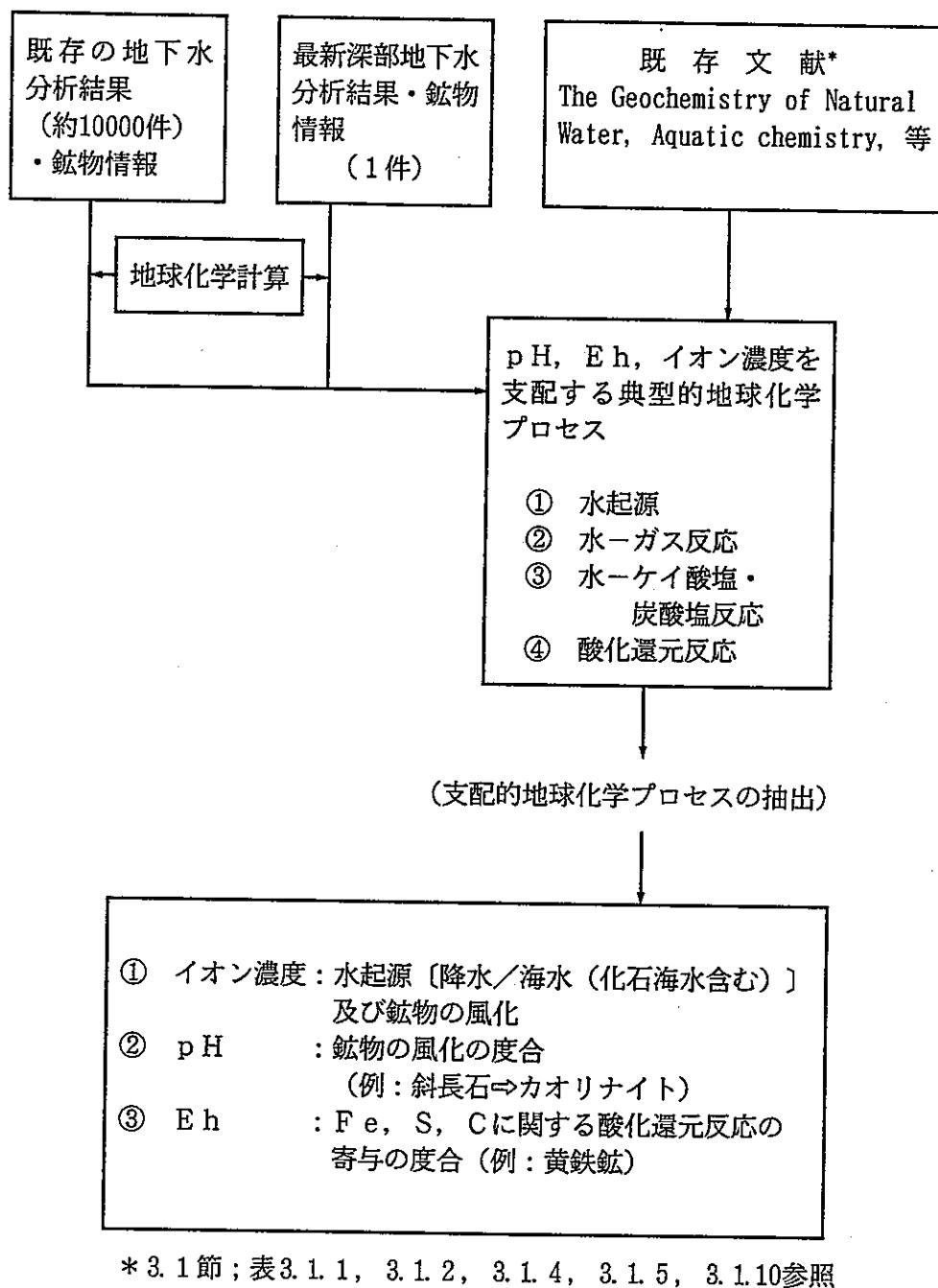


図4.1.2 地下水特性を支配する地球化学プロセスの抽出

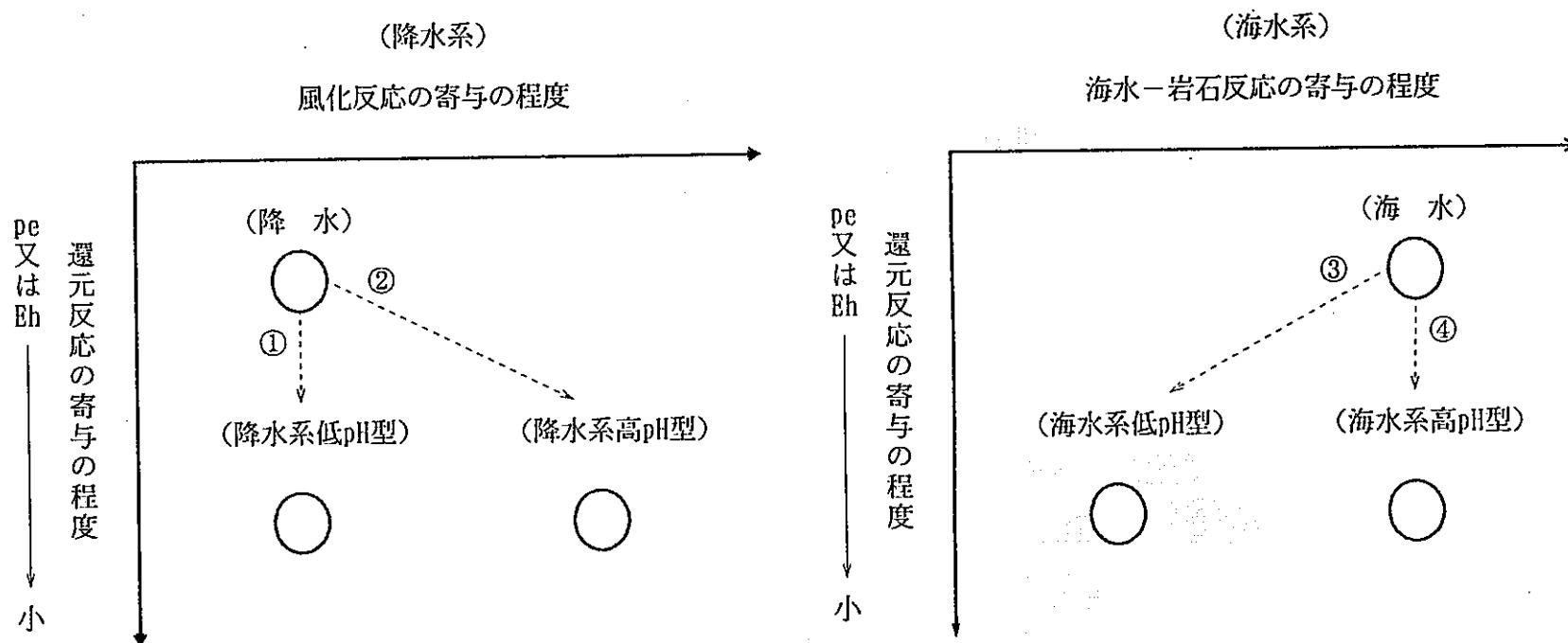


図4.1.3 核種移行特性評価上の地下水特性の設定の概念

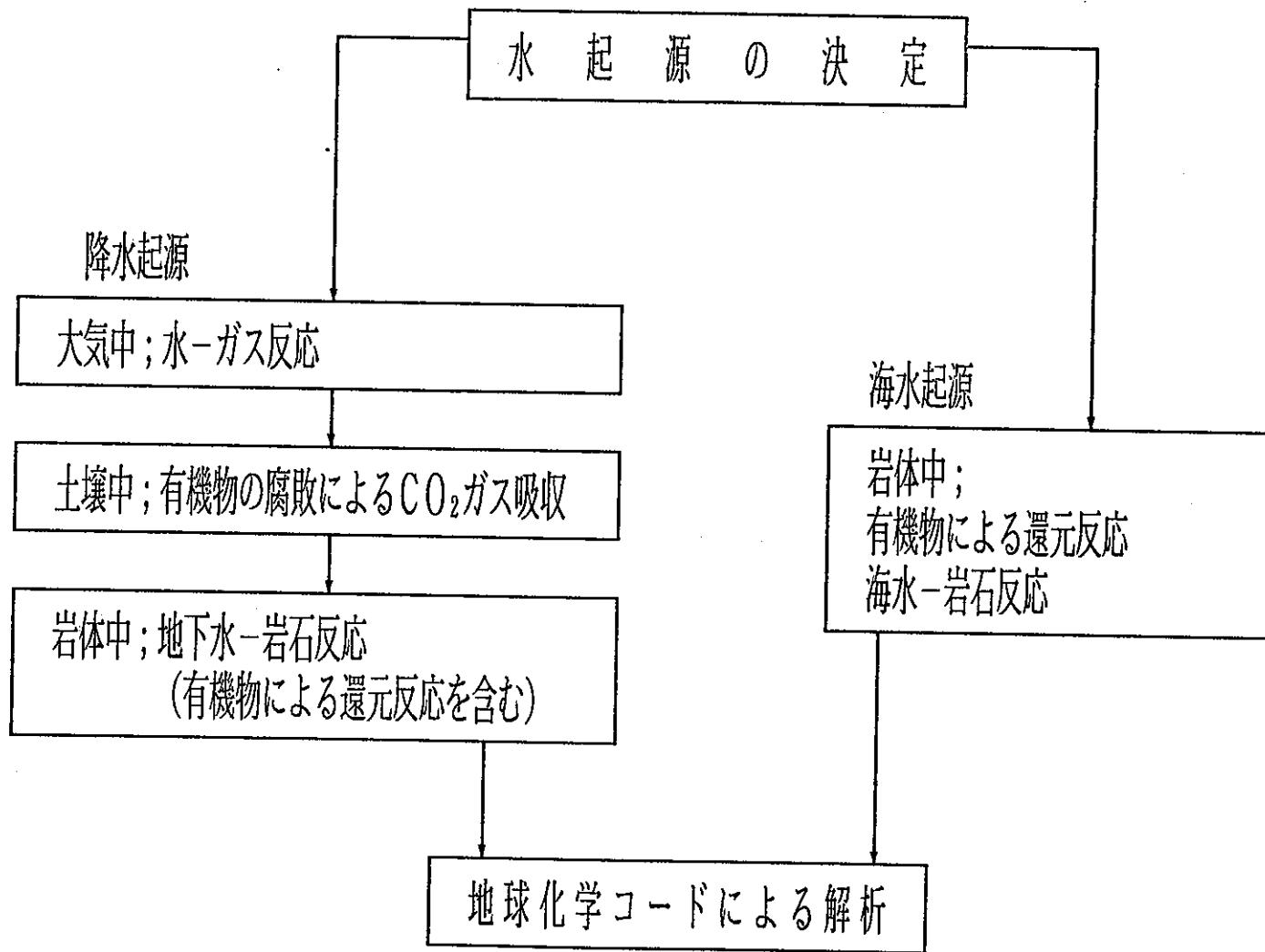


図4.2.1 地下水の化学的変遷モデルの作成手順

## 5. 解析

### 5.1 解析のための計算コードおよび熱力学データ

#### 5.1.1 計算コード

解析に用いたコードは、国際的に地球化学計算に広汎に使用されており、その信頼性も国際的ベンチマークテスト(Read and Broyd, 1988)で確認されている地球化学コードPHREEQE (Parkhurst et al., 1980)を基本に取扱える水溶性化学種、鉱物種を増やしたPHREEQE60を使用する事とした。

#### 5.1.2 热力学データ

##### 5.1.2.1 既存の热力学データベースの種類

解析で用いる热力学データは実験により得られるものであり、実験条件、実験誤差等を十分把握した上で、ある選定基準に基づき、データベース化しなければならない。従って地下水解析を実施するに際しては、全ての水溶性化学種、鉱物を対象として、首尾一貫した考え方に基づきデータベースを設定する必要がある。

ここでは、地下水生成モデルに関連する地球化学元素(Na, K, Ca, Mg, Fe, Al, Si, C, S, O, H)の热力学データベースについて述べることとする。現在公開されている热力学データベースのデータセットを以下に示す。

###### 1) PHREEQE オリジナル (Ball, 1979; Ball, 1980)

主にBallらによるコンパイル文献(Ball, 1979)及びBallらによるWATEQ 2 の平衡モデル(Ball, 1980)から引用している。活量係数の算出においてDebye-Hückelの式を用いる場合、イオンサイズパラメータ(分母の係数)はKielland(1937)の値を用いており、この時他の全ての係数は0としている。また、0としない場合はWATEQ Debye-Hückel式となり、他の公式としては、Daviesの式も用いられている。

###### 2) NEA データベース

本データベースは、アクチニド及びFPに関するデータが主体となっているが、これらのデータとともに地球化学元素のデータについても取扱っており、これらのデータは、主にMullerのコンパイル文献等(Ball, 1980; Muller, 1985)より引用している。

###### 3) EQ3/6 データベース

本データベースは、EQ3/6 (Wolery, 1979) ソフトウェアパッケージ(バージョン

3245, 0888) で用意されているDATA0 のデータセットであり、これらのデータは主に Helgesonの文献 (Helgeson and Kirkham, 1974, 1976; Helgeson et al., 1978) より引用している。

#### 4) Harwell データベース (Cross et al., 1987)

本データベースは、PHREEQE オリジナルのデータベースに、さらにアクチニドを中心とした種々の文献よりデータを追加したものである。

#### 5.1.2.2 平衡計算に使用した熱力学データベース

地下水生成モデルの平衡計算に使用した熱力学データベースは、PHREEQE オリジナルのデータベースにNEA のデータベースを追加したものである。参考のためPHREEQE オリジナルデータベースに追加あるいは見直した地球化学元素の熱力学データ（水溶性化学種、鉱物）を表5.1.1～5.1.3 に示す。また、水溶性化学種、鉱物の平衡定数ならびにこの平衡定数に対する反応式及び出典は付録1 「使用した熱力学データベース」に示す。これら熱力学データは、上で述べた通り、公開データベースを引用している事、さらにはこの熱力学データベースを用いたCHEMVALプロジェクトの例題 (PHREEQE60での解析) (Read and Broyd, 1988) を満足している (図5.1.1, 図5.1.2) 事などから、熱力学的データは十分適用可能であると判断した。なおこれら熱力学データは25°Cの標準データとして広範囲に収集・整備されており、温度依存性に関するデータ（エンタルピー、熱容量）は非常に限られているため、ここでは25°Cのデータに基づき解析することとした。

#### 5.2 解析結果及び実測値との比較

5種類のモデル地下水（降水系高pH型、降水系低pH型、海水系高pH型、海水系低pH型、および仮想的酸化性地下水として、降水系高pH型）の解析結果を表5.1.4～表5.1.8 に示す。

これらモデル地下水の化学的性質は、仮想的酸化性地下水を除き、以下のようにまとめることができる。

- ・ 4つのモデル地下水は、モデル化において考慮した黄鉄鉱、有機炭素等が降水または海水に含まれる溶存酸素等の酸化性化学種を消費することにより、すべて還元状態 (pe : 約-5～-3) にある。また、pHは約6～9の中性から弱アルカリ性の領域にある。
- ・ 2つの海水系地下水におけるpHの変化はpH約6～8 (pe : 約-5～-3) と小さく、組成的にも大きな変化はない。
- ・ 2つの降水系地下水におけるpHの変化は、pH約6～9 (pe : 約-5～-3) で、低pH型地下水のほうが、溶存イオン濃度が若干高い傾向がある。
- ・ 降水系地下水と海水系地下水とでは、 $\text{Na}^+$ ,  $\text{Cl}^-$  イオン濃度以外の溶存イオンの組成的

差異は小さい。

なお上記のうち降水系高pH型地下水については、上記モデルと実測された地下水の生成反応過程が対応すると考えられる事、及び原位置の地質情報が豊富な事、並びに測定された地下水組成に関する信頼性が高いと考えられる事から、東濃土岐夾炭層の地下水組成(表3.2.9)との比較を試みた。その結果、表5.1.4に示す通り予測されたpH、Eh、イオン濃度は実測された地下水組成をかなりよく表すことが出来た。

### 5.3 モデル地下水に関する感度解析

4種類の地下水（仮想的酸化性地下水を除く）のモデル化において用いられた鉱物種は、既に述べたように典型例である。そこで、我が国の堆積岩、カコウ岩類（母岩鉱物、割れ目に存在する鉱物）で出現するその他の代表的な鉱物についても、その組み合わせを考え、感度解析を実施した。解析においては不確定要因と考えられる土壤中の炭酸ガス分圧ならびに岩体中の有機物（有機炭素量）についても併せてパラメータとして取り扱った。感度解析の考え方、解析条件、解析結果の詳細は付録2に示す。

本検討の結果、前節で設定された基本的な4種類のモデル地下水のpHは、感度解析から得られた上限、下限付近に存在している。

前節の解析では、シリカ濃度の支配鉱物として石英を採用しているが、短期的には、アモルファスシリカ、玉髓も考えられることから、石英の代わりにこれらの鉱物を想定して、地下水組成に対する影響についても調べた。解析の詳細は付録3に示すが、降水系地下水の場合の地下水組成の幅をとらえるという観点では、石英を考えておけばよいことが判った。

現在のところ降水系の出発溶液として考えている降水は純水としているが、実際の降水は微量ではあるものの塩分または種々のイオンを含んでいる。このため、風送塩を考慮した場合の影響度についても検討した。解析条件、結果の詳細は付録4に示すが、同様に地下水組成の幅をとらえるという観点では、純水を考えておけばよいことが判った。

以上のことから、厳密な意味で地下水組成の幅をとらえるためには、今後、さらに信頼できる深部地下水データの取得を進めていくと同時に、モデルの妥当性を確認するための研究を行っていく必要があるものの、地層処分の性能評価上、地質環境を幅広くとらえるためには、ここで示した地下水のモデル化は有効であると考える。

参考文献

- Ball, J. W., Jenne, E. A., and Nordstrom, D. K. (1979): WATEQ2--A Computerized Chemical Model for Trace and Major Element Speciation and Mineral Equilibria of Natural Waters, in Jenne, E. A., ed., Chemical Modelling in Aqueous Systems. Speciation, Sorption, Solubility and Kinetics: Washington, D. C., American Chemical Society Symposium Series 93, pp. 815-835.
- Ball, J. W., Nordstrom, D. K., and Jenne, E. A. (1980): Additional and Revised Thermochemical Data and Computer Code for WATEQ2--A Computerized Chemical Model for Trace and Major Element Speciation and Mineral Equilibria of Natural Waters: U. S. Geological Survey Water-Resources Investigations 78-116, 109 p.
- Cross, J. E., Ewart, F. T. and Tweed, C. J. (1987) : Thermochemical Modelling with Application to Nuclear Waste Processing and Disposal, AERE-R12324
- Helgeson, H. C., and Kirkham, D. H. (1974): Theoretical Prediction of the Thermodynamic Behavior of Aqueous Electrolytes at High Pressures and Temperatures: I. Summary of The Thermodynamic/Electrostatic Properties of the Solvent, Amer. J. Sci. 274, pp. 1089-1198.
- Helgeson, H. C., and Kirkham, D. H. (1976): Theoretical Prediction of the Thermodynamic Behavior of Aqueous Electrolytes at High Pressures and Temperatures: III. Equation of State for Aqueous Species at Infinite Dilution, Amer. J. Sci. 276, pp. 97-240.
- Helgeson, H. C., Delany, J. M., Nesbitt, H. W. and Bird, D. K. (1978): Summary and Critique of the Thermodynamic Properties of Rock-forming Minerals, Amer. J. Sci. 278-A, pp. 1-229.
- Kielland, J. (1937): Individual Activity Coefficients of Ions in Aqueous Solutions: American Chemical Society Journal, V-59, pp. 1675-1678.
- Parkhurst, D. L., Thorstenson, D. C. and Plummer, L. N. (1980): PHREEQE-A Computer Program for Geochemical Calculations, U.S. Geologica Survey, Water-Resources Investigations 80-96.
- Read, D. and Broyd, T. (1988); Report on Stage 1 of Project CEMVAL/MIRAGE, E0979.001/DR/Km.
- Muller, A. B. (1985): NEA Compilation of Chemical Thermodynamic Data for Minerals Associated with Granite, OECD-NEA, RWM-5 NEA report
- Wolery, T. J. (1979): Calculation of Chemical Equilibria Between Aqueous Solution and Minerals, the EQ3/6 Software Package, UCR-52658, Lawrence Livermore Laboratory

表5.1.1 PHREEQE データベースに付加あるいは見直したデータ

水溶性化学種	生 成 反 応				平衡定数 (Log K)
Si <sub>2</sub> O <sub>2</sub> (OH) <sub>5</sub> <sup>-</sup>	2H <sub>4</sub> SiO <sub>4</sub>	- H <sub>2</sub> O	- H <sup>+</sup>		- 8.100
Si <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (OH) <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	2H <sub>4</sub> SiO <sub>4</sub>	- H <sub>2</sub> O	-2H <sup>+</sup>		-19.001
Si <sub>3</sub> O <sub>5</sub> (OH) <sub>5</sub> <sup>3-</sup>	3H <sub>4</sub> SiO <sub>4</sub>	-2H <sub>2</sub> O	-3H <sup>+</sup>		-27.501
Si <sub>3</sub> O <sub>6</sub> (OH) <sub>3</sub> <sup>3-</sup>	3H <sub>4</sub> SiO <sub>4</sub>	-3H <sub>2</sub> O	-3H <sup>+</sup>		-28.601
Si <sub>4</sub> O <sub>7</sub> (OH) <sub>5</sub> <sup>3-</sup>	4H <sub>4</sub> SiO <sub>4</sub>	-4H <sub>2</sub> O	-3H <sup>+</sup>		-25.501
SiO(OH) <sub>3</sub> <sup>-</sup>	H <sub>4</sub> SiO <sub>4</sub>		- H <sup>+</sup>		- 9.810
SiO <sub>2</sub> (OH) <sub>2</sub> <sup>2-</sup>	H <sub>4</sub> SiO <sub>4</sub>		-2H <sup>+</sup>		-23.141
H <sub>2</sub> S	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	-4H <sub>2</sub> O	+10H <sup>+</sup>	+ 8 e <sup>-</sup>	40.681
H <sub>2</sub> SO <sub>3</sub>	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	- H <sub>2</sub> O	+ 4H <sup>+</sup>	+ 2 e <sup>-</sup>	5.663
HS <sub>2</sub> O <sub>3</sub> <sup>-</sup>	2SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	-5H <sub>2</sub> O	+11H <sup>+</sup>	+ 8 e <sup>-</sup>	39.605
HSO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	- H <sub>2</sub> O	+ 3H <sup>+</sup>	+ 2 e <sup>-</sup>	3.823
S <sub>2</sub> O <sub>3</sub> <sup>2-</sup>	2SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	-5H <sub>2</sub> O	+10H <sup>+</sup>	+ 8 e <sup>-</sup>	38.015
SO <sub>3</sub> <sup>2-</sup>	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	- H <sub>2</sub> O	+ 2H <sup>+</sup>	+ 2 e <sup>-</sup>	- 3.397
C1O <sup>-</sup>	C1 <sup>-</sup>	+ H <sub>2</sub> O	- 2H <sup>+</sup>	- 2 e <sup>-</sup>	-57.935
C1O <sub>2</sub> <sup>-</sup>	C1 <sup>-</sup>	+2H <sub>2</sub> O	- 4H <sup>+</sup>	- 4 e <sup>-</sup>	- 107.877
C1O <sub>3</sub> <sup>-</sup>	C1 <sup>-</sup>	+3H <sub>2</sub> O	- 6H <sup>+</sup>	- 6 e <sup>-</sup>	- 146.242
C1O <sub>4</sub> <sup>-</sup>	C1 <sup>-</sup>	+4H <sub>2</sub> O	- 8H <sup>+</sup>	- 8 e <sup>-</sup>	- 187.791
HC1O	C1 <sup>-</sup>	+ H <sub>2</sub> O	- H <sup>+</sup>	- 2 e <sup>-</sup>	-50.515
HC1O <sub>2</sub>	C1 <sup>-</sup>	+2H <sub>2</sub> O	- 3H <sup>+</sup>	- 4 e <sup>-</sup>	- 105.916

表5.1.2 PHREEQE データベースに付加あるいは見直したデータ

鉱物*	解離反応				平衡定数 (Log K)
SILICAGEL		H <sub>4</sub> SiO <sub>4</sub>	-	2H <sub>2</sub> O	- 2.70
SILICAGLAS		H <sub>4</sub> SiO <sub>4</sub>	-	H <sub>2</sub> O	- 3.02
SEP PPT	2Mg <sup>2+</sup>	+ 3H <sub>4</sub> SiO <sub>4</sub>	-	4.5 H <sub>2</sub> O + 4 OH <sup>-</sup>	-37.21
MACKINIT	Fe <sup>2+</sup>	+ HS <sup>-</sup>		- H <sup>+</sup>	- 4.63
TREMOLITE	5Mg <sup>2+</sup>	+ 2Ca <sup>2+</sup>	+ 8H <sub>4</sub> SiO <sub>4</sub>	- 8H <sub>2</sub> O - 14H <sup>+</sup>	57.70
ANDRADIT	2Fe <sup>2+</sup>	+ 3Ca <sup>2+</sup>	+ 3H <sub>4</sub> SiO <sub>4</sub>	12H <sup>+</sup> - 2e <sup>-</sup>	55.10
LIME, Q	Ca <sup>2+</sup>		+ H <sub>2</sub> O	- 2H <sup>+</sup>	32.70
MG2SI2O6	2Mg <sup>2+</sup>	+ 2H <sub>4</sub> SiO <sub>4</sub>	- 2H <sub>2</sub> O	- 4H <sup>+</sup>	23.26
TALC	3Mg <sup>2+</sup>	+ 4H <sub>4</sub> SiO <sub>4</sub>	- 4H <sub>2</sub> O	- 6H <sup>+</sup>	20.60
SEPIOLITE	4Mg <sup>2+</sup>	+ 6H <sub>4</sub> SiO <sub>4</sub>	- H <sub>2</sub> O	- 8H <sup>+</sup>	32.83
MAGNESIO	Mg <sup>2+</sup>	+ 2Fe <sup>2+</sup>	+ 4H <sub>2</sub> O	- 8H <sup>+</sup> - 2e <sup>-</sup>	42.82
PERICLASE	Mg <sup>2+</sup>		+ H <sub>2</sub> O	- 2H <sup>+</sup>	21.58
HEMATITE	2Fe <sup>2+</sup>		+ 3H <sub>2</sub> O	- 6H <sup>+</sup> - 2e <sup>-</sup>	22.40
FE2SI2O6	2Fe <sup>2+</sup>	+ 2H <sub>4</sub> SiO <sub>4</sub>	- 2H <sub>2</sub> O	- 4H <sup>+</sup>	10.60
MAGNETITE	3Fe <sup>2+</sup>		+ 4H <sub>2</sub> O	- 8H <sup>+</sup> - 2e <sup>-</sup>	30.65
PYRRHOTITE	7Fe <sup>2+</sup>	+ 8SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	- 32H <sub>2</sub> O + 64H <sup>+</sup> + 62e <sup>-</sup>		-321.28
LAWRENCITE	Fe <sup>2+</sup>	+ 2Cl <sup>-</sup>			6.82
MOLYSITE	Fe <sup>2+</sup>	+ 3Cl <sup>-</sup>		- e <sup>-</sup>	24.56
GOETHITE	Fe <sup>2+</sup>		+ 2H <sub>2</sub> O	- 3H <sup>+</sup> - e <sup>-</sup>	11.29
PYRRHOTITE	Fe <sup>2+</sup>	+ SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	- 4H <sub>2</sub> O	- 8H <sup>+</sup> + 8e <sup>-</sup>	-39.78
PYRITE	Fe <sup>2+</sup>	+ 2SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	- 8H <sub>2</sub> O	+ 16H <sup>+</sup> + 14e <sup>-</sup>	-85.95
CHALCEDONY		+ H <sub>4</sub> SiO <sub>4</sub>	- 2H <sub>2</sub> O		- 3.49
QUARTZ		+ H <sub>4</sub> SiO <sub>4</sub>	- 2H <sub>2</sub> O		- 3.78
SILICA H		+ H <sub>4</sub> SiO <sub>4</sub>	- 2H <sub>2</sub> O	- H <sup>+</sup> + e <sup>-</sup>	- 2.47

\*鉱物名は、PHREEQE フォーマットによる。

表5.1.3 PHREEQE データベースに付加あるいは見直したデータ

鉱物*	解離反応	平衡定数 (Log K)
ALUNITE	$3\text{Al}^{3+} + 2\text{SO}_4^{2-} + \text{K}^+ + 6\text{H}_2\text{O} - 6\text{H}^+$	1.61
MICROCLINE	$\text{Al}^{3+} + \text{K}^+ + 3\text{H}_4\text{SiO}_4 - 4\text{H}_2\text{O} - 4\text{H}^+$	1.78
ORTHOCLACE	$\text{Al}^{3+} + \text{K}^+ + 3\text{H}_4\text{SiO}_4 - 4\text{H}_2\text{O} - 4\text{H}^+$	0.86
ANNITE	$\text{Al}^{3+} + \text{K}^+ + 3\text{H}_4\text{SiO}_4 + 3\text{Fe}^{2+} - 10\text{H}^+$	22.33
ALMANDIN	$2\text{Al}^{3+} + 3\text{Fe}^{2+} + 3\text{H}_4\text{SiO}_4 - 12\text{H}^+$	33.41
TOPAZ, O	$2\text{Al}^{3+} + \text{H}_4\text{SiO}_4 + 2\text{H}_2\text{O} - 6\text{H}^+$	12.81

\*鉱物名は、PHREEQEフォーマットによる。

表5.1.4 降水系高pH型の地下水 (25°C)

モデル化のための仮定	濃度 (mol/l)											
	pH	pe	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	CO <sub>3</sub> <sup>2-</sup>	HCO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	Na <sup>+</sup>	K <sup>+</sup>	Ca <sup>2+</sup>	Mg <sup>2+</sup>	Fe(total)	SiO <sub>2</sub>	Cl <sup>-</sup>
降水	7.0	4.0										
P <sub>CO<sub>2</sub></sub> =10 <sup>-3.5</sup> atm P <sub>O<sub>2</sub></sub> =10 <sup>-0.7</sup> atm												
→	5.7	14.9		4.7E-11	2.2E-6							
P <sub>CO<sub>2</sub></sub> =10 <sup>-1.0</sup> atm												
→	4.4	14.9		4.8E-4	3.9E-5							
方解石 アルバイト 石英 白雲母 カオリナイト 黄鉄鉱												
↓												
計算値	8.7	-4.8	1.3E-4	2.3E-4	6.6E-3	7.2E-3	1.9E-8	3.8E-5	—	6.3E-5	1.8E-4	—
東濃土岐層実測値例	8.6	-5.1	1.0E-5	—	1.5E-3	1.5E-3	7.7E-6	1.3E-4	4.2E-6	1.8E-6	—	2.9E-5

表5.1.5 降水系低pH型の地下水 (25°C)

モデル化のための仮定	濃度 (mol/l)											
	pH	pe	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	CO <sub>3</sub> <sup>2-</sup>	HCO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	Na <sup>+</sup>	K <sup>+</sup>	Ca <sup>2+</sup>	Mg <sup>2+</sup>	Fe(total)	SiO <sub>2</sub>	Cl <sup>-</sup>
降水	7.0	4.0										
P <sub>CO<sub>2</sub></sub> =10 <sup>-3.5</sup> atm P <sub>O<sub>2</sub></sub> =10 <sup>-0.7</sup> atm	5.7	14.9		4.7E-11	2.2E-6							
P <sub>CO<sub>2</sub></sub> =10 <sup>-1.0</sup> atm	4.4	14.9		4.8E-11	3.9E-5							
アルバイト カオリナイト	6.3	14.9		2.7E-7	2.3E-5	2.3E-3					4.63E-3	
方解石 アルバイト 石英 磁鉄鉱	7.0	13.6		3.6E-6	6.1E-3	2.3E-3		2.0E-3		3.1E-9	1.7E-4	
アルバイト 石英 磁鉄鉱 有機炭素 (1.2E-1mol/l)												
計算値	5.7	-2.7	—	2.8E-7	8.2E-3	2.5E-3	—	2.0E-3	—	8.2E-4	1.6E-4	—

表5.1.6 海水系高pH型の地下水 (25°C)

モデル化のための仮定	濃度 (mol/l)											
	pH	pe	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	CO <sub>3</sub> <sup>2-</sup>	HCO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	Na <sup>+</sup>	K <sup>+</sup>	Ca <sup>2+</sup>	Mg <sup>2+</sup>	Fe(total)	SiO <sub>2</sub>	Cl <sup>-</sup>
海水	8.0	4.0	2.9E-2	2.1E-5	1.7E-3	4.8E-1	1.0E-2	1.0E-2	5.4E-2	5.6E-8	6.9E-5	5.5E-1
石英 ドロマイト 方解石 カリ長石 白雲母 アルバイト 有機炭素 (1.1E-1mol/l)												
計算値	8.0	-5.2	7.3E-5	2.1E-4	1.8E-2	6.0E-1	2.2E-4	2.2E-4	1.5E-4	5.6E-8	1.5E-4	5.5E-1

表5.1.7 海水系低pH型の地下水 (25°C)

モデル化のための仮定	濃度 (mol/l)											
	pH	pe	$\text{SO}_4^{2-}$	$\text{CO}_3^{2-}$	$\text{HCO}_3^-$	$\text{Na}^+$	$\text{K}^+$	$\text{Ca}^{2+}$	$\text{Mg}^{2+}$	$\text{Fe(total)}$	$\text{SiO}_2$	$\text{Cl}^-$
海水 ↓ ドロマイト 白雲母 石英 有機炭素 ( $1.1\text{E}-1\text{mol/l}$ ) ↓	8.0	4.0	2.9E-2	2.1E-5	1.7E-3	4.8E-1	1.0E-2	1.0E-2	5.4E-2	5.6E-8	6.9E-5	5.5E-1
計算値	6.3	-3.1	1.3E-3	3.6E-6	1.5E-2	4.8E-1	1.0E-2	2.3E-3	4.6E-2	5.6E-8	1.5E-4	5.5E-1

表5.1.8 降水系高pH型の地下水(仮想的酸化性地下水) (25°C)

モデル化のための仮定	濃度 (mol/l)											
	pH	pe	$\text{SO}_4^{2-}$	$\text{CO}_3^{2-}$	$\text{HCO}_3^-$	$\text{Na}^+$	$\text{K}^+$	$\text{Ca}^{2+}$	$\text{Mg}^{2+}$	$\text{Fe(total)}$	$\text{SiO}_2$	$\text{Cl}^-$
降水	7.0	4.0										
$P_{\text{CO}_2} = 10^{-3.5} \text{ atm}$												
$P_{\text{O}_2} = 10^{-0.7} \text{ atm}$												
→	5.7	14.9		4.7E-11	2.2E-6							
方解石 アルバイト 石英 白雲母 カオリナイト 黄鉄鉱												
↓												
計算値	10.0	10.6	—	4.2E-5	8.1E-5	3.7E-4	9.7E-10	1.0E-4	—	—	4.4E-4	—

- 105 -

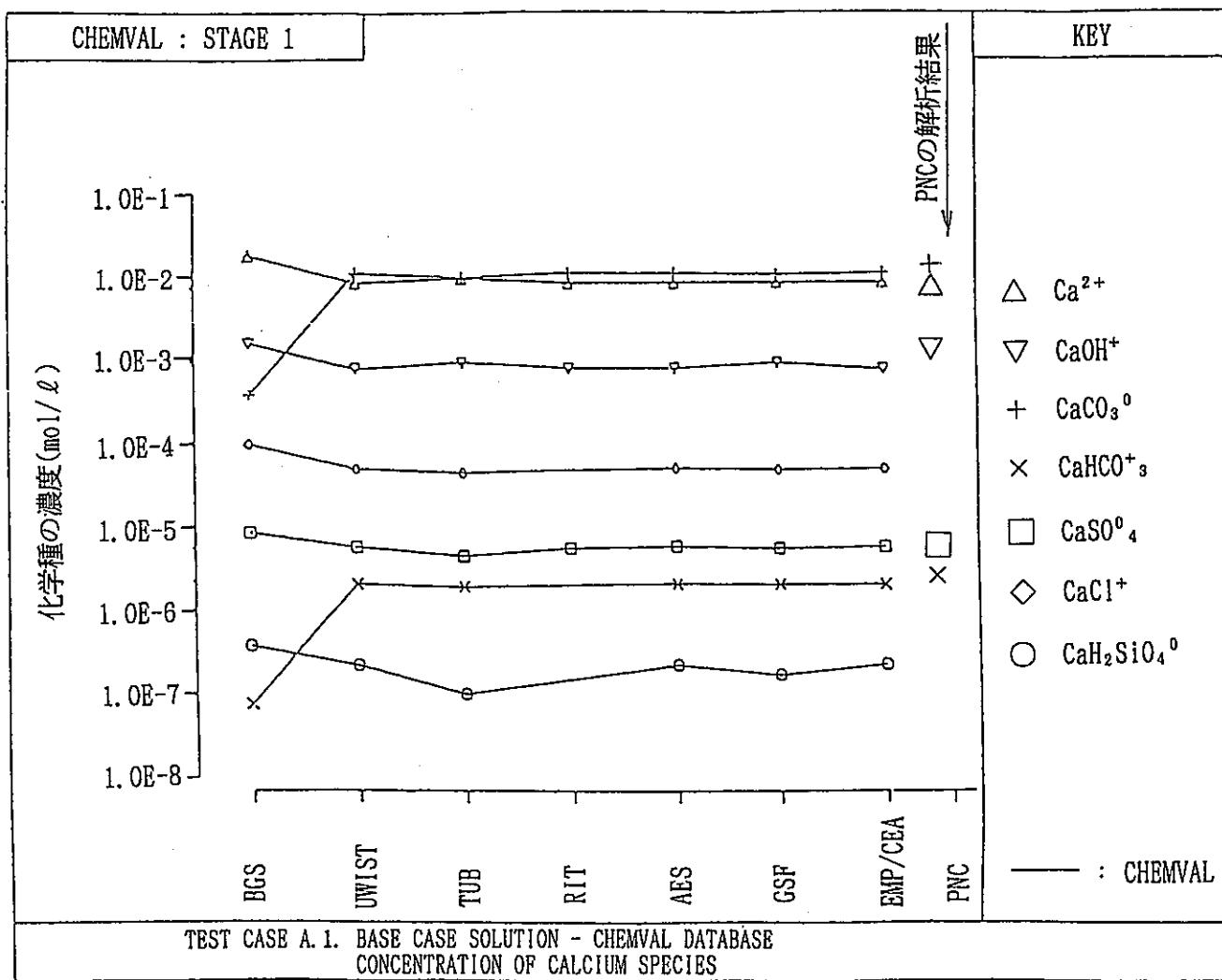


図5.1.1 検証、確証の一例 (CHEMVAL Case A.1との比較)

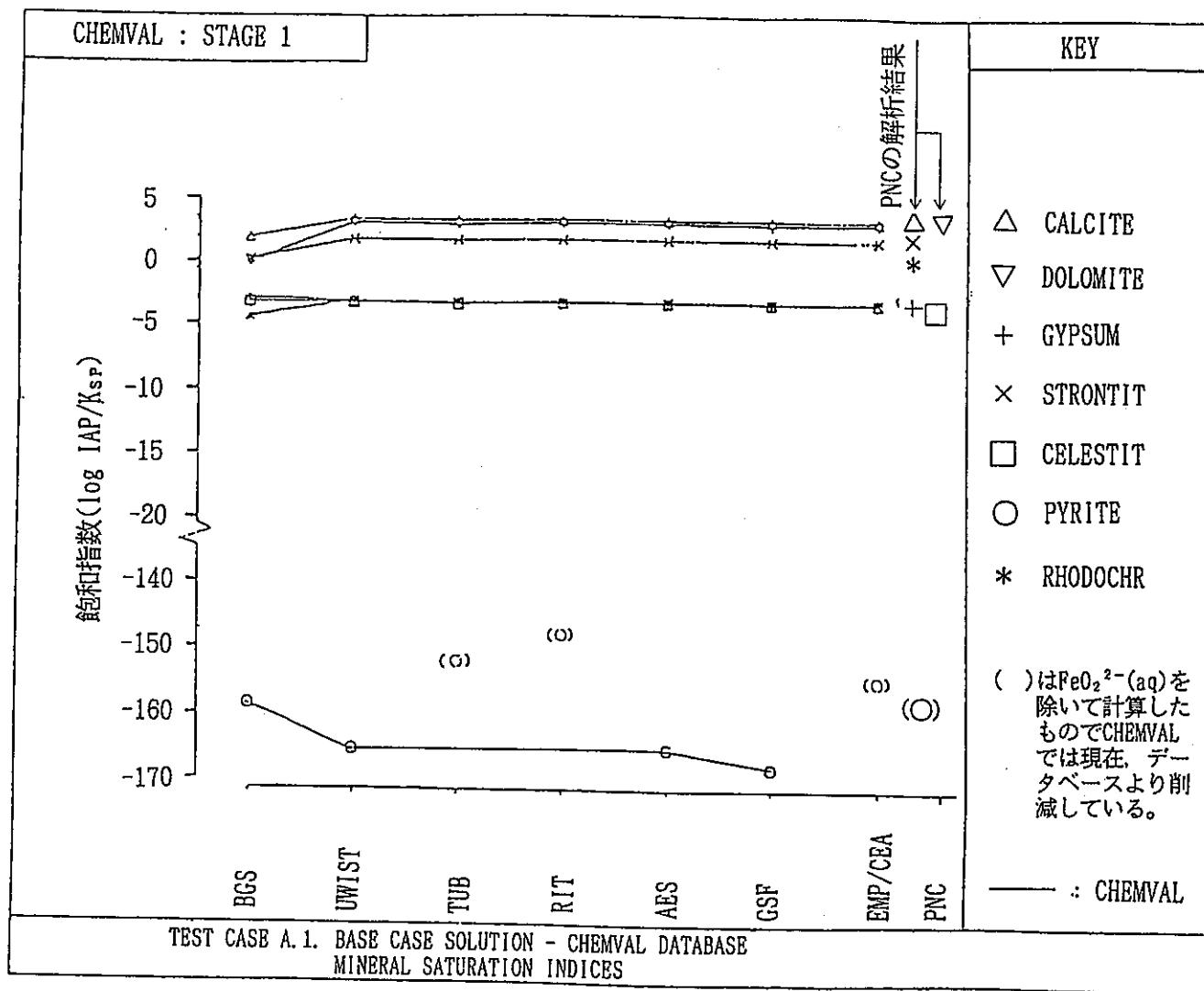


図5.1.2 検証、確証の一例 (CHEMVAL Case A.1との比較)

## 6. 結論

地下水の化学的条件（pH, Eh, イオン濃度）は元素の溶解度等に影響を与え、地層処分システムの性能評価上重要な地質環境条件の一つである。したがって、それらの特性を把握することが必要であるが、現在のところ評価に足る実測値は非常に少ない。以上のことから、地下水の化学的条件を、性能評価の観点から設定するため、一般的に適用可能と考えられる理論や実測データに基づく地球化学的変遷プロセスのモデル化を行った。

その結果、地下水の起源と地下水-岩石反応の進展を考慮した地球化学平衡モデルにより、わが国の多岐にわたる地下水組成について、性能評価の観点から以下の5種類（仮想的酸化性地下水1種類を含む。）のモデル地下水を設定することができた。

- ① 降水系高pH型地下水
- ② 降水系低pH型地下水
- ③ 海水系高pH型地下水
- ④ 海水系低pH型地下水
- ⑤ 降水系高pH型地下水（仮想的酸化性地下水）

これらモデル地下水の化学的性質は、仮想的酸化性地下水を除き、すべて還元状態（pe：約-5～-3）で、pHは約6～9の中性から弱アルカリの領域にあることがわかった。

## 7. 今後の研究開発課題

### (1) 信頼できる深部地下水データや地質情報の蓄積

深部地下水組成及び関連する鉱物等の情報（有機物・微生物等による影響を含む）を、地球化学的な環境条件（温度、圧力、雰囲気や水理条件）を変化させずに取得することは、データの信頼性を保証するという意味でも重要である。精度の高いデータは、地下水水質を熱力学あるいは速度論モデルで説明し、それらモデルの妥当性を確認する上でも必要である。

### (2) 実験室レベルの岩石-水反応実験

系の条件を十分に制御した上でバッチ法、カラム法により岩石-水反応試験を行うことは以下の観点より重要である。

- (a) 热力学データの取得及び確証、平衡モデルの適用性検討
- (b) 反応機構の解明及び速度論モデルの開発および確証

### (3) 固溶体モデルの開発

多くの鉱物は固溶体を形成しており、特に地下水水質を支配する粘土鉱物のイオン交換、溶解・沈殿について厳密な解析を行うためには、それらを考慮したモデルを開発することも重要である。

### (4) 関連データベースの開発

(1)～(3)に関して、既存のデータベースを土台に、データ取得、確証研究も含めた体系的なデータベース化を行う必要があろう。

## 8. 謝 辞

本報告書を作成するあたって、NAGRA（スイス）のDr. Ian G. McKinley 氏、本社環境技術開発推進本部主幹の佐々木憲明氏、中部事業所環境地質課長の湯佐泰久氏、東海事業所環境技術開発部長の増田純男氏には本報告書の作成全般にわたり貴重な御助言、ご指導を賜りました。また、本社環境本部の斎藤茂幸氏、東海事業所環境技術開発部の石川博久氏、中部事業所環境地質課の瀬尾俊弘氏には本報告書を作成するにあたり、多数議論に参加して頂きました。本社環境技術開発推進本部処分研究グループの内藤守正氏には本報告書の校正・編集に関して御協力、貴重な御助言を頂きました。ここに感謝いたします。

高レベル廃棄物地層処分システムの性能評価における  
地下水の地球化学的特性に関するモデル化

付 錄

	ページ
付録 1 使用した熱力学データベース .....	111
付録 2 地下水組成の感度解析 .....	157
付録 3 シリカ鉱物の影響度解析 .....	166
付録 4 風送塩による地下水組成の影響度解析 .....	168

## 付録1 使用した熱力学データベース

## 1. 热力学データベースの見方

PHREEQE用データベースは、(1)ELEMENTS、(2)SPECIES、(3)MINERALS、の3つの部分から成っている。以下、各々の部分について簡単に説明する。説明にあたっては、まずそのデータの概略と実例（括弧内は変数名）、そのあと各変数の意味、フォーマットを示す。

## (1) ELEMENTS

ここでは、熱力学データベースに含まれる化学種・鉱物の構成要素となる元素を定義する。

Ca	4	40.	Ca+2
(TNAME)	(NELT)	(TGFW)	(MNAME)

FORMAT(A8, 2X, I2, 3X, F10. 0)

TNAME : 元素名。

NELT : 各元素のインデックスナンバー。

TGFW : 親化学種の質量数。分析値を計算で使用する重量モル濃度に変換するため使用する。

MNAME : 親化学種名。各化学種・鉱物の生成反応を統一的に記述するために便宜上定義する（コメント文）。

## (2) SPECIES

ここでは、各化学種の生成反応の化学量論係数、平衡定数等を定義する。

70	FROM ORIGINAL						
(I)	(REFERENCE)						
HSO4-	210	-1.000	6.000	0.000	0.000	0.000	0.000
(SNAME)	(NSP, KFLAG, (ZSP)	(THSP)	(DHA)	(ADHSP(1))	(ADHSP(2))	(ALKSP)	GFLAG)

2.000	4.91	-5.3505	0.0183412	557.2461
-------	------	---------	-----------	----------

(LKTOSP) (DHSP) (ASP(I), I=1, 5)

16	1.000	1	1.000
----	-------	---	-------

(LSP(I), CSP(I), I=1, NSP)

FORMAT(I3,/

A8, 2X, I3, 2I1, 6F10.3,/

2F10.3, 5E12.5,/

6(I3, F7.3))

SNAME : 化学種名。

NSP : 化学種の生成反応に含まれる親化学種の数。

KFLAG : =0; Van't Hoff の式を使って平衡定数の温度依存を計算。

=1; 分析的な式 (ASP(I)) を使って平衡定数の温度依存を計算。

GFLAG : 活量係数計算式の選定。

ZSP : 化学種の電荷。

THSP : 酸化還元に寄与する親化学種を含んでいる場合、そのOPV(実効原子価) の総和。(例 ;  $\text{HSO}_4^-$  では、H(0), S(+6), O(0) よりOPV=6)。

DHA, ADHSP(1), ADHSP(2) : Debye-Hückel 式で活量係数を計算するときの係数の値。

ALKSP : 化学種に割り当てられるアルカリ度。

LKTOSP : 生成反応の平衡定数 ( $25^\circ\text{C}$ )。DHSP : 生成反応の標準エンタルピー ( $25^\circ\text{C}$ )。ASP(I) : 平衡定数の温度依存を分析的な式を使って計算する場合の係数。  
(I=1, 5)

LSP(I) : 化学種を形成する親化学種のインデックスナンバー。

CSP(I) : 化学種を形成する親化学種の化学量論係数。

(この例では、 $\text{SO}_4^{2-} + \text{H}^+ \rightleftharpoons \text{HSO}_4^-$ )

## (3) MINERALS

ここでは、各鉱物の解離反応の化学量論係数、平衡定数等を定義する。

RaCO <sub>3</sub>	2	4.0	-7.00	0.000	0	0.00	! HARWELL !
-------------------	---	-----	-------	-------	---	------	-------------

(NAME) (NMINO) (THMIN) (LKTOM) (DHMIN) (MFLAG) (SIMIN) (REFERENCE)

37	1.000	15	1.000
----	-------	----	-------

(LSP(I), CSP(I), I=1, NSP)

FORMAT(A8, 2X, I2, 3X, 3F10.2, 5X, I1, 9X, F10.3 /

5(I4, F11.3))

MNAME : 鉱物名。

NMINO : 鉱物の解離反応に含まれる親化学種の数。

THMIN : 鉱物の解離反応での化学種のOPVの総和。

LKTOM : 解離反応の平衡定数 (25°C)。

DHMIN : 解離反応の標準エンタルピー (25°C)。

MFLAG : =0; Van't Hoff の式を使って平衡定数の温度依存を計算。

=1; 分析的な式 (ASP(I)) を使って平衡定数の温度依存を計算。

SIMIN : 最終の溶液で望まれる飽和指数(log(活量積/Ksp))。

LSP(I) : 鉱物を形成する親化学種、水溶性化学種のインデックスナンバー。

CSP(I) : 鉱物を形成する親化学種、水溶性化学種の化学量論係数。

(この例では, RaCO<sub>3</sub> ⇌ Ra<sup>2+</sup>+CO<sub>3</sub><sup>2-</sup>)

## 2. 热力学データベースの作成経緯

本データベースは、PHREEQE オリジナル(Parkhurst et al., 1980) をベースに、1990年時点でOECD/NEAで選定されたデータベース（例えば, Muller, 1985; Grenthe et al., 1990）を T D B インターフェースプログラムにより追加し、更に、アクチニド元素に関しては、 Harwell R 12324 データベース(Cross et al., 1987), BPNLのデータ(Rai et al., 1983; Felmy et al., 1990), EQ3/6の DATA0 3245R54及びPhillips (1988) のデータベースからデータを抽出し、エディタ入力により追加・編集した。

その後、種々の検討を踏まえ一部信頼性に疑問のある化学種（アクチニド元素の高次加水分解種等）は削除している。なお、 $\text{CO}_2(\text{aq})$  については $\text{H}_2\text{CO}_3(\text{aq})$  と等価であるため削除すべきであるが、地下水や緩衝液のpH範囲から影響がないと判断し、本解析では削除していない。

## DATA: CARD IMAGES FROM DISK

## ELEMENTS

CA	4	40.	CA+2
MG	5	24.	MG+2
NA	6	23.	NA+
K	7	39.	K+
FE	8	56.	FE+2
MN	9	55.	MN+2
AL	10	27.	AL+3
BA	11	137.	BA+2
SR	12	88.	SR+2
SI	13	96.	H4SiO4(AQ)
CL	14	35.	CL-
C	15	60.	CO3-2
S	16	96.	SO4-2
N	17	62.	NO3-
B	18	62.	B(OH)3(AQ)
P	19	95.	PO4-3
F	20	19.	F-
LI	21	7.	Li+
BR	22	80.	BR-
I	23	127.	I-
TC	24	115.	TCD+2
U	25	238.	U+4
CO	27	59.	CO+2
AM	28	243.	AM+3
PU	29	239.	PU+4
CS	30	133.	CS+
NI	31	59.	NI+2
SE	32	143.	SEO4-2
ZR	33	91.	ZR+4
SN	34	119.	SN+2
SM	35	150.	SM+3 NO SPECIES
PB	36	207.	PB+2
RA	37	226.	RA+2
TH	38	232.	TH+4
PA	39	231.	PA+4
NP	40	237.	NP+4
NB	41	141.	NBO3-
PD	42	106.	PD+2
AG	43		NO SPECIES
ND	44	144.	ND+3
Z	45	1080.	Z-
SB	46	154.	SB02-
BI	47	209.	BI+3
PO	48	209.	PO+4
AC	49	227.	AC+3
CM	50	247.	CM+3

## SPECIES

1								
H+		100	1.000	0.000	9.000	0.000	0.000	0.
0.0		0.0						
1	1.0							
2								
E-		100	-1.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.
0.0		0.0						
2	1.0							
3								
H2O(L)		100	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.

0.0	0.0						
3 1.0							
4							
CA+2	101	2.000	0.000	6.000	5.000	0.165	0.
0.0	0.0						
4 1.0							
5							
MG+2	101	2.000	0.000	8.000	5.500	0.200	0.
0.0	0.0						
5 1.0							
6							
NA+	101	1.000	0.000	4.000	4.000	0.075	0.
0.0	0.0						
6 1.0							
7							
K+	101	1.000	0.000	3.000	3.500	0.015	0.
0.0	0.0						
7 1.0							
8							
FE+2	100	2.000	2.000	6.000	0.000	0.000	0.
0.0	0.0						
8 1.0							
9							
MN+2	100	2.000	2.000	6.000	0.000	0.000	0.
0.0	0.0						
9 1.0							
10							
AL+3	100	3.000	0.000	9.000	0.000	0.000	0.
0.0	0.0						
10 1.0							
11							
BA+2	100	2.000	0.000	5.000	0.000	0.000	0.
0.0	0.0						
11 1.0							
12							
SR+2	101	2.000	0.000	5.000	5.260	0.121	0.
0.0	0.0						
12 1.0							
13							
H4SiO4(A	100	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.
0.0	0.0						
13 1.0							
14							
CL-	101	-1.000	0.000	3.000	3.500	0.015	0.
0.0	0.0						
14 1.0							
15							
CO3-2	101	-2.000	4.000	4.500	5.400	0.000	2.
0.0	0.0						
15 1.0							
16							
SO4-2	101	-2.000	6.000	4.000	5.000	-0.040	0.
0.0	0.0						
16 1.0							
17							
NO3-	100	-1.000	5.000	3.000	0.000	0.000	0.
0.0	0.0						
17 1.0							
18							
B(OH)3(A	100	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.
0.0	0.0						

18	1.0							
19								
P04-3	100	-3.000	0.000	4.000	0.000	0.000	2.	
0.0	0.0							
19	1.0							
20								
F-	100	-1.000	0.000	3.500	0.000	0.000	0.	
0.0	0.0							
20	1.0							
21								
LI+	100	1.000	0.000	6.000	0.000	0.000	0.	
0.0	0.0							
21	1.0							
22								
BR-	100	-1.000	0.000	3.000	0.000	0.000	0.	
0.0	0.0							
22	1.0							
23								
I-	100	-1.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.	
0.0	0.0							
23	1.0							
24	FOR TCO+2 FROM NEA							
TCO+2	100	2.000	4.000	0.000	0.000	0.000	0.	
0.0	0.0							
24	1.0							
25	FOR U+4 FROM NEA							
U+4	100	4.000	4.000	0.000	0.000	0.000	0.	
0.0	0.0							
25	1.0							
27								
C0+2	100	2.000	2.000	0.000	0.000	0.000	0.	
0.0	0.0							
27	1.0							
28	FOR AM+3 FROM BATTELLE-PNL							
AM+3	100	3.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.	
0.0	0.0							
28	1.0							
29	FOR PU+4 FROM HARWELL R12324							
PU+4	100	4.000	4.000	0.000	0.000	0.000	0.	
0.0	0.0							
29	1.0							
30	FOR CS+ FROM HARWELL R12324							
CS+	100	1.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.	
0.0	0.0							
30	1.0							
31								
NI+2	100	2.000	0.0	0.0	0.0	0.0	0.	
0.0	0.0							
31	1.000							
32	FOR SEO4-2 FROM HARWELL R12324							
SEO4-2	100	-2.000	6.0	0.0	0.0	0.0	0.	
0.0	0.0							
32	1.000							
33	FOR ZR+4 FROM HARWELL R12324							
ZR+4	100	4.000	0.0	0.0	0.0	0.0	0.	
0.0	0.0							
33	1.000							
34	FOR SN+2 FROM EQ3/6							
SN+2	100	2.000	2.0	0.0	0.0	0.0	0.	
0.0	1.0							
34	1.000							

35								
SM+3	100	3.000	0.0	0.0	0.0	0.0	0.	
35	0.0	0.0						
35	1.000							
36								
PB+2	100	2.000	2.0	0.0	0.0	0.0	0.	
36	0.0	0.0						
36	1.000							
37	FOR RA+2	FROM HARWELL R12324						
RA+2	100	2.000	0.0	0.0	0.0	0.0	0.	
37	0.0	0.0						
37	1.000							
38	FOR TH+4	FROM HARWELL R12324						
TH+4	100	4.000	0.0	0.0	0.0	0.0	0.	
38	0.0	0.0						
38	1.000							
39	FOR PA+4	FROM HARWELL R12324						
PA+4	100	4.000	4.0	0.0	0.0	0.0	0.	
39	0.0	0.0						
39	1.000							
40	FOR NP+4	FROM HARWELL R12324						
NP+4	100	4.000	4.0	0.0	0.0	0.0	0.	
40	0.0	0.0						
40	1.000							
41								
NB03-	100	-1.000	5.0	0.0	0.0	0.0	0.	
41	0.0	0.0						
41	1.000							
42	FOR PD+2	FROM PHILLIPS 1988						
PD+2	100	2.000	2.0	0.0	0.0	0.0	0.	
42	0.0	0.0						
42	1.000							
44								
ND+3	100	3.000	3.0	0.0	0.0	0.0	0.	
44	0.0	0.0						
44	1.000							
45	FOR Z	FROM PNC						
Z-	100	-1.0	0.0	0.0			0.0	
0.0	0.0							
45	1.0							
46								
SB02-	100	-1.0	3.0	0.0			0.0	
0.0	0.0							
46	1.0							
47								
BI+3	100	3.0	0.0	0.0			0.0	
0.0	0.0							
47	1.0							
48								
P0+4	100	4.0	4.0	0.0			0.0	
0.0	0.0							
48	1.0							
49	FOR AC+3	FROM HARWELL R12324						
AC+3	100	3.0	0.0	0.0			0.0	
0.0	0.0							
49	1.0							
50								
CM+3	100	3.0	3.0	0.0			0.0	
0.0	0.0							
50	1.0							
61	FROM ORIGINAL							

OH-	200	-1.000	0.000	3.500	0.000	0.000	1.
-14.000	13.345						
3 1.0	1 -1.0						
62	FROM ORIGINAL						
D2 AQ	300	0.000	4.000	0.000	0.000	0.000	0.
-86.08	134.79						
3 2.0	1 -4.0	2 -4.0					
63	FROM ORIGINAL						
H2 AQ	200	0.000	-2.000	0.000	0.000	0.000	0.
-3.15	-1.759						
1 2.0	2 2.0						
64	FROM ORIGINAL						
HC03-	211	-1.000	4.000	4.500	5.400	0.000	1.
10.330	-3.561	107.8871	0.03252849	-5151.79	-38.92561	563713.9	
15 1.0	1 1.0						
65	FROM ORIGINAL						
H2C03	210	0.000	4.000	0.000	0.000	0.000	0.
16.681	-5.738	464.1965	0.09344813	-26986.16	-165.75951	2248628.9	
15 1.0	1 2.0						
66	FROM ORIGINAL						
CH4 AQ	400	0.000	-4.000	0.000	0.000	0.000	0.
41.071	-61.039						
15 1.0	1 10.0	2 8.0	3 -3.0				
70	FROM ORIGINAL						
HS04-	210	-1.000	6.000	0.000	0.000	0.000	0.
2.000	4.91	-5.3505	0.0183412	557.2461			
16 1.0	1 1.0						
71	FROM ORIGINAL						
S-2	400	-2.000	-2.000	5.000	0.000	0.000	2.
20.735	-28.04						
16 1.0	1 8.0	2 8.0	3 -4.0				
72	FROM ORIGINAL						
HS-	400	-1.000	-2.000	3.500	0.000	0.000	1.
33.652	-40.14						
16 1.0	1 9.0	2 8.0	3 -4.0				
78	FROM ORIGINAL						
N02-	400	-1.000	3.000	3.000	0.000	0.000	0.
28.57	-43.76						
17 1.0	1 2.0	2 2.0	3 -1.0				
79	FROM ORIGINAL						
N2 AQ	400	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.
207.08	-312.13						
17 2.0	1 12.0	2 10.0	3 -6.0				
80	FROM ORIGINAL						
NH3(AQ)	400	0.000	-3.000	0.000	0.000	0.000	1.
109.83	-174.58						
17 1.0	1 9.0	2 8.0	3 -3.0				
81	FROM ORIGINAL						
NH4+	400	1.000	-3.000	2.500	0.000	0.000	0.
119.070	-187.055						
17 1.0	1 10.0	2 8.0	3 -3.0				
82	FROM ORIGINAL						
NH4SO4-	500	-1.000	3.000	0.000	0.000	0.000	0.
120.19	-187.055						
17 1.0	1 10.0	2 8.0	16 1.0	3 -3.0			
87	FROM ORIGINAL						
H2B03-	200	-1.000	0.000	0.000	0.000	0.000	1.
-9.240	3.224						
18 1.0	1 -1.0						
88	FROM ORIGINAL						
BFOH3-	200	-1.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.

-0.40	1.85							
18 1.0	20 1.0							
89	FROM ORIGINAL							
BF20H2-	400	-1.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.	
7.628	1.635							
18 1.0	20 2.0	1 1.0	3 -1.0					
90	FROM ORIGINAL							
BF30H-	400	-1.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.	
13.666	-1.58							
18 1.0	1 2.0	20 3.0	3 -2.0					
91	FROM ORIGINAL							
BF4-	400	-1.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.	
20.274	-1.795							
18 1.0	1 3.0	20 4.0	3 -3.0					
95	FROM ORIGINAL							
HP04-2	200	-2.000	0.000	4.000	0.000	0.000	1.	
12.350	-3.53							
19 1.0	1 1.0							
96	FROM ORIGINAL							
H2P04-	200	-1.000	0.000	4.500	0.000	0.000	0.	
19.550	-4.52							
19 1.0	1 2.0							
99	FROM ORIGINAL							
HF AQ	200	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.	
3.170	3.46							
1 1.0	20 1.0							
100	FROM ORIGINAL							
HF2-	200	-1.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.	
3.749	4.55							
1 1.0	20 2.0							
105	FROM ORIGINAL							
CAOH+	300	1.000	0.000	0.000	0.000	0.000	1.	
-12.598	14.535							
4 1.0	3 1.0	1 -1.0						
106	FROM ORIGINAL							
CAC03	210	0.000	4.000	0.000	0.000	0.000	2.	
3.225	3.547	-1228.732	-0.299440	35512.75,	485.818			
4 1.0	15 1.0							
107	FROM ORIGINAL							
CAHC03+	311	1.000	4.000	0.000	5.400	0.000	1.	
11.435	-0.869	1317.0071	0.34546894	-39916.84	-517.70761	563713.9		
4 1.0	15 1.0	1 1.0						
108	FROM ORIGINAL							
CAS04	200	0.000	6.000	0.000	0.000	0.000	0.	
2.309	1.470							
4 1.0	16 1.0							
109	FROM ORIGINAL							
CAP04-	200	-1.000	0.000	0.000	0.000	0.000	2.	
6.459	3.100							
4 1.0	19 1.0							
110	FROM ORIGINAL							
CAHP04	300	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	1.	
15.085	-0.230							
4 1.0	1 1.0	19 1.0						
111	FROM ORIGINAL							
CAH2P04+	300	1.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.	
20.961	-1.120							
4 1.0	1 2.0	19 1.0						
112	FROM ORIGINAL							
CAF+	200	1.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.	
0.940	3.798							

4 1.0	20 1.0						
115	FROM ORIGINAL						
MGOH+	300	1.000	0.000	0.000	0.000	0.000	1.
-11.794	15.419						
5 1.0	3 1.0	1 -1.0					
116	FROM ORIGINAL						
MGC03	210	0.000	4.000	0.000	0.000	0.000	2.
2.981	2.535	-32.172	0.0	1093.486	12.72433		
5 1.0	15 1.0						
117	FROM ORIGINAL						
MGHCO3+	310	1.000	4.000	0.000	0.000	0.000	1.
11.397	-2.775	48.6721	0.03252849	-2614.335	-18.00263	563713.9	
5 1.0	1 1.0	15 1.0					
118	FROM ORIGINAL						
MGS04	200	0.000	6.000	0.000	0.000	0.000	0.
2.250	1.4						
5 1.0	16 1.0						
119	FROM ORIGINAL						
MGP04-	200	-1.000	0.000	0.000	0.000	0.000	2.
6.589	3.100						
5 1.0	19 1.0						
120	FROM ORIGINAL						
MGHP04	300	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	1.
15.216	-0.230						
5 1.0	1 1.0	19 1.0					
121	FROM ORIGINAL						
MGH2PO4+	300	1.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.
21.066	-1.120						
5 1.0	1 2.0	19 1.0					
122	FROM ORIGINAL						
MGF+	200	1.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.
1.820	4.674						
5 1.0	20 1.0						
125	FROM ORIGINAL						
NAC03-	200	-1.000	4.000	0.000	0.000	0.000	2.
1.268	8.911						
6 1.0	15 1.0						
126	FROM ORIGINAL						
NAHC03	300	0.000	4.000	0.000	0.000	0.000	1.
10.080	-3.604						
6 1.0	1 1.0	15 1.0					
127	FROM ORIGINAL						
NAS04-	200	-1.000	.6.000	0.000	0.000	0.000	0.
0.700	1.120						
6 1.0	16 1.0						
128	FROM ORIGINAL						
NAHP04-	300	-1.000	0.000	0.000	0.000	0.000	1.
12.636	-3.530						
6 1.0	1 1.0	19 1.0					
130	FROM ORIGINAL						
KS04-	200	-1.000	6.000	0.000	0.000	0.000	0.
0.85	2.25						
7 1.0	16 1.0						
131	FROM ORIGINAL						
KHP04-	300	-1.000	0.000	0.000	0.000	0.000	1.
12.636	-3.530						
7 1.0	1 1.0	19 1.0					
135	FROM ORIGINAL						
FEOH+	300	1.000	2.000	0.000	0.000	0.000	1.
-9.500	13.2						
8 1.0	3 1.0	1 -1.0					

136	FROM ORIGINAL							
FEOH2	300	0.000	2.000	0.000	0.000	0.000	2.	
-20.570	28.565							
8 1.0	3 2.0	1 -2.0						
137	FROM ORIGINAL							
FEOH3-	300	-1.000	2.000	0.000	0.000	0.000	3.	
-31.000	30.300							
8 1.0	3 3.0	1 -3.0						
138	FROM ORIGINAL							
FES04	200	0.000	8.000	0.000	0.000	0.000	0.	
2.25	3.23							
8 1.0	16 1.0							
139	FROM ORIGINAL							
FE(HS)2	500	0.000	-2.000	0.000	0.000	0.000	2.	
76.250	-120.280							
8 1.0	16 2.0	1 18.0	2 16.0	3 -8.0				
140	FROM ORIGINAL							
FE(HS)3-	500	-1.000	-4.000	0.000	0.000	0.000	3.	
111.937	-180.420							
8 1.0	16 3.0	1 27.0	2 24.0	3 -12.0				
141	FROM ORIGINAL							
FEHP04	300	0.000	2.000	0.000	0.000	0.000	1.	
15.946	-3.530							
8 1.0	1 1.0	19 1.0						
142	FROM ORIGINAL							
FEH2P04+	300	1.000	2.000	0.000	0.000	0.000	0.	
22.253	-4.520							
8 1.0	1 2.0	19 1.0						
145	FROM ORIGINAL							
FE+3	200	3.000	3.000	9.000	0.000	0.000	0.	
-13.032	10.0							
8 1.0	2 -1.0							
146	FROM ORIGINAL							
FEOH+2	400	2.000	3.000	0.000	0.000	0.000	0.	
-15.22	20.4							
8 1.0	3 1.0	2 -1.0	1 -1.0					
147	FROM ORIGINAL							
FEOH2+	400	1.000	3.000	0.000	0.000	0.000	0.	
-18.70	10.0							
8 1.0	3 2.0	1 -2.0	2 -1.0					
148	FROM ORIGINAL							
FEOH3	400	0.000	3.000	0.000	0.000	0.000	1.	
-26.63	10.0							
8 1.0	3 3.0	1 -3.0	2 -1.0					
149	FROM ORIGINAL							
FEOH4-	400	-1.000	3.000	0.000	0.000	0.000	2.	
-34.63	10.0							
8 1.0	3 4.0	1 -4.0	2 -1.0					
150	FROM ORIGINAL							
FE20H2+4	400	4.000	6.000	0.000	0.000	0.000	0.	
-29.01	33.5							
8 2.0	3 2.0	1 -2.0	2 -2.0					
151	FROM ORIGINAL							
FE30H4+5	400	5.000	9.000	0.000	0.000	0.000	0.	
-45.4	44.3							
8 3.0	3 4.0	1 -4.0	2 -3.0					
152	FROM ORIGINAL							
FECL+2	300	2.000	3.000	0.000	0.000	0.000	0.	
-11.55	15.6							
8 1.0	14 1.0	2 -1.0						
153	FROM ORIGINAL							

FECL2+	300	1.000	3.000	0.000	0.000	0.000	0.
-10.90	10.0						
8 1.0	14 2.0		2 -1.0				
154	FROM ORIGINAL						
FECL3	300	0.000	3.000	0.000	0.000	0.000	0.
-11.90	10.0						
8 1.0	14 3.0		2 -1.0				
155	FROM ORIGINAL						
FES04+	300	1.000	9.000	0.000	0.000	0.000	0.
-9.11	13.91						
8 1.0	16 1.0		2 -1.0				
156	FROM ORIGINAL						
FES042-	300	-1.000	15.000	0.000	0.000	0.000	0.
-7.61	14.60						
8 1.0	16 2.0		2 -1.0				
157	FROM ORIGINAL						
FEHPO4+	400	1.000	3.000	0.000	0.000	0.000	1.
4.74	12.23						
8 1.0	1 1.0		19 1.0		2 -1.0		
158	FROM ORIGINAL						
FEH2P+2.	400	2.000	3.000	0.000	0.000	0.000	0.
11.95	5.48						
8 1.0	1 2.0		19 1.0		2 -1.0		
159	FROM ORIGINAL						
FEF+2	300	2.000	3.000	0.000	0.000	0.000	0.
-6.8	12.7						
8 1.0	20 1.0		2 -1.0				
160	FROM ORIGINAL						
FEF2+	300	1.000	3.000	0.000	0.000	0.000	0.
-2.2	14.7						
8 1.0	20 2.0		2 -1.0				
161	FROM ORIGINAL						
FEF3	300	0.000	3.000	0.000	0.000	0.000	0.
0.97	15.4						
8 1.0	20 3.0		2 -1.0				
165	FROM ORIGINAL						
MNOH+	300	1.000	2.000	0.000	0.000	0.000	1.
-10.59	14.40						
9 1.0	3 1.0		1 -1.0				
166	FROM ORIGINAL						
MNOH3-	300	-1.000	2.000	0.000	0.000	0.000	3.
-34.80	0.0						
9 1.0	3 3.0		1 -3.0				
167	FROM ORIGINAL						
MNCL+	200	1.000	2.000	0.000	0.000	0.000	0.
0.607	0.0						
9 1.0	14 1.0						
168	FROM ORIGINAL						
MNCL2	200	0.000	2.000	0.000	0.000	0.000	0.
0.041	0.0						
9 1.0	14 2.0						
169	FROM ORIGINAL						
MNCL3-	200	-1.000	2.000	0.000	0.000	0.000	0.
-0.305	0.0						
9 1.0	14 3.0						
170	FROM ORIGINAL						
MNHCO3+	300	1.000	2.000	0.000	0.000	0.000	1.
11.60	-3.604						
9 1.0	15 1.0		1 1.0				
171	FROM ORIGINAL						
MNS04	200	0.000	8.000	0.000	0.000	0.000	0.

		2.26	2.17					
		9 1.0	16 1.0					
172	FROM ORIGINAL	MN<NO3>2	200	0.000	12.000	0.000	0.000	0.000 0.
0.6			-0.396					
9 1.0	17 2.0							
173	FROM ORIGINAL	MNF+	200	1.000	2.000	0.000	0.000	0.000 0.
0.85			0.0					
9 1.0	20 1.0							
174	FROM ORIGINAL	MN+3	200	3.000	3.000	0.000	0.000	0.000 0.
-25.507			25.76					
9 1.0	2 -1.0							
175	FROM ORIGINAL	MN04-2	400	-2.000	6.000	0.000	0.000	0.000 0.
-118.440			150.02					
9 1.0	3 4.0			1 -8.0	2 -4.0			
176	FROM ORIGINAL	MN04-	400	-1.000	7.000	3.500	0.000	0.000 0.
-127.824			176.62					
9 1.0	3 4.0			1 -8.0	2 -5.0			
180	FROM ORIGINAL	ALOH+2	300	2.000	0.000	0.000	0.000	0.000 0.
-4.99			11.9					
10 1.0	3 1.0			1 -1.0				
181	FROM ORIGINAL	ALOH2+	300	1.000	0.000	0.000	0.000	0.000 0.
-10.1			0.0					
10 1.0	3 2.0			1 -2.0				
182	FROM ORIGINAL	ALOH3	300	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000 1.
-16.0			0.0					
10 1.0	3 3.0			1 -3.0				
183	FROM ORIGINAL	ALOH4-	300	-1.000	0.000	0.000	0.000	0.000 2.
-23.000			44.06					
10 1.0	3 4.0			1 -4.0				
184	FROM ORIGINAL	ALSO4+	200	1.000	6.000	0.000	0.000	0.000 0.
3.02			2.15					
10 1.0	16 1.0							
185	FROM ORIGINAL	ALSO42-	200	-1.000	12.000	0.000	0.000	0.000 0.
4.92			2.84					
10 1.0	16 2.0							
186	FROM ORIGINAL	ALF+2	200	2.000	0.000	0.000	0.000	0.000 0.
7.01			0.0					
10 1.0	20 1.0							
187	FROM ORIGINAL	ALF2+	200	1.000	0.000	0.000	0.000	0.000 0.
12.75			20.0					
10 1.0	20 2.0							
188	FROM ORIGINAL	ALF3	200	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000 0.
17.02			2.50					
10 1.0	20 3.0							
189	FROM ORIGINAL	ALF4-	200	-1.000	0.000	0.000	0.000	0.000 0.
19.72			0.0					

10	1.0	20	4.0					
193	FROM ORIGINAL							
BAOH+	300	1.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	1.
-13.358	15.095							
11	1.0	3	1.0	1	-1.0			
195	FROM ORIGINAL							
SROH+	300	1.000	0.000	5.000	0.000	0.000	0.000	1.
-13.178.	14.495							
12	1.0	3	1.0	1	-1.0			
196	FROM ORIGINAL							
SRHC03+	310	1.000	4.000	5.400	0.000	0.000	0.000	1.
11.513	2.486	104.6389	0.04739549	-5151.79	-38.92561	563713.9		
12	1.0	15	1.0	1	1.0			
197	FROM ORIGINAL							
SRC03	210	0.000	4.000	0.000	0.000	0.000	0.000	2.
2.805	5.217	-1.019	0.012826					
12	1.0	15	1.0					
198	FROM ORIGINAL							
SRS04	200	0.000	6.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.
2.55	1.6							
12	1.0	16	1.0					
202	FROM ORIGINAL							
S1F6-2	400	-2.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.
30.18	-16.26							
13	1.0	1	4.0	20	6.0	3	-4.0	
211	FROM ORIGINAL							
LISO4-	200	-1.000	6.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.
0.640	0.0							
21	1.0	16	1.0					
215	FROM HARWELL R12324							
103-	400	-1.000	6.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.
-111.000	0.0							
23	1.000	1	-6.000	2	-6.000	3	3.000	
217	FOR S1202(OH)5-	FROM NEA						
S1202(OH)	300	-1.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.
-8.100	0.000	0.00000E+00	0.00000E+00	0.00000E+00	0.00000E+00	0.00000E+00	0.00000E+00	0.0
13	2.000	3	-1.000	1	-1.000			
218	FOR S1203(OH)4-2	FROM NEA						
S1203(OH)	300	-2.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.
-19.001	0.000	0.00000E+00	0.00000E+00	0.00000E+00	0.00000E+00	0.00000E+00	0.00000E+00	0.0
13	2.000	3	-1.000	1	-2.000			
219	FOR S1305(OH)5-3	FROM NEA						
S1305(OH)	300	-3.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.
-27.501	0.000	0.00000E+00	0.00000E+00	0.00000E+00	0.00000E+00	0.00000E+00	0.00000E+00	0.0
13	3.000	3	-2.000	1	-3.000			
220	FOR S1306(OH)3-3	FROM NEA						
S1306(OH)	300	-3.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.
-28.601	0.000	0.00000E+00	0.00000E+00	0.00000E+00	0.00000E+00	0.00000E+00	0.00000E+00	0.0
13	3.000	3	-3.000	1	-3.000			
222	FOR S1407(OH)5-3	FROM NEA						
S1407(OH)	300	-3.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.
-25.501	0.000	0.00000E+00	0.00000E+00	0.00000E+00	0.00000E+00	0.00000E+00	0.00000E+00	0.0
13	4.000	3	-4.000	1	-3.000			
223	FOR S10(OH)3-	FROM NEA						
S10(OH)3	200	-1.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.
-9.810	0.000	0.00000E+00	0.00000E+00	0.00000E+00	0.00000E+00	0.00000E+00	0.00000E+00	0.0
13	1.000	1	-1.000					

224 FOR SI02(OH)2-2 FROM NEA  
SI02(OH) 200 -2.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.  
-23.141 0.000 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0  
13 1.000 1 -2.000

225 FOR (UO2)3(CO3)6-6 FROM NEA  
(UO2)3(C 500 -6.000 42.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.  
26.922 86.774 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0  
15 6.000 25 3.000 3 6.000 1-12.000 2 -6.000

226 FOR (UO2)3(OH)5CO2+ FROM NEA  
(UO2)3(O 500 1.000 22.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.  
-26.328 0.000 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0  
15 1.000 25 3.000 3 10.000 1-15.000 2 -6.000

227 FOR CO2(AQ)  
CO2(AQ) 300 0.000 4.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.  
16.681 -5.705 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0  
15 1.000 3 -1.000 1 2.000

230 FOR U(CO3)4-4 FROM NEA  
U(CO3)4- 200 -4.000 20.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.  
32.881 0.000 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0  
15 4.000 25 1.000

231 FOR U(CO3)5-6 FROM NEA  
U(CO3)5- 200 -6.000 24.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.  
34.001 -4.782 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0  
15 5.000 25 1.000

232 FOR UO2(CO3)2-2 FROM NEA  
UO2(CO3) 500 -2.000 14.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.  
8.007 37.891 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0  
15 2.000 25 1.000 3 2.000 1 -4.000 2 -2.000

233 FOR UO2(CO3)3-4 FROM NEA  
UO2(CO3) 500 -4.000 18.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.  
12.637 25.241 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0  
15 3.000 25 1.000 3 2.000 1 -4.000 2 -2.000

234 FOR UO2(CO3)3-5 FROM NEA  
UO2(CO3) 500 -5.000 17.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.  
-0.073 0.000 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0  
15 3.000 25 1.000 3 2.000 1 -4.000 2 -1.000

235 FOR UO2CO3(AQ) FROM NEA  
UO2CO3(A 500 0.000 10.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.  
0.707 35.595 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0  
15 1.000 25 1.000 3 2.000 1 -4.000 2 -2.000

236 FOR H2S(AQ) FROM NEA  
H2S(AQ) 400 0.000 -2.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.  
40.681 -65.179 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0  
16 1.000 3 -4.000 1 10.000 2 8.000

237 FOR H2SO3(AQ) FROM NEA  
H2SO3(AQ) 400 0.000 4.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.  
5.663 0.000 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0  
16 1.000 3 -1.000 1 4.000 2 2.000

239 FOR HS203- FROM NEA  
HS203- 400 -1.000 4.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.  
39.605 0.000 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0  
16 2.000 3 -5.000 1 11.000 2 8.000

240 FOR HS03- FROM NEA  
HS03- 400 -1.000 4.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.  
3.823 0.000 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0  
16 1.000 3 -1.000 1 3.000 2 2.000

243 FOR S203-2 FROM NEA  
S203-2 400 -2.000 4.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.  
38.015 0.000 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0  
16 2.000 3 -5.000 1 10.000 2 8.000

244 FOR SO3-2 FROM NEA

S03-2 400 -2.000 4.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.  
   -3.397 0.000 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0  
 16 1.000 3 -1.000 1 2.000 2 2.000  
 246 FOR U(S04)2(AQ) FROM NEA  
 U(S04)2( 200 0.000 16.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.  
   10.420 7.819 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0  
 16 2.000 25 1.000  
 247 FOR U02(S03)2-2 FROM NEA  
 U02(S03) 300 -2.000 14.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.  
   -8.187 0.000 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0  
 16 2.000 25 1.000 2 2.000  
 248 FOR U02(S04)2-2 FROM NEA  
 U02(S04) 500 -2.000 18.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.  
   -4.843 42.793 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0  
 16 2.000 25 1.000 3 2.000 1 -4.000 2 -2.000  
 249 FOR U02S203(AQ) FROM NEA  
 U02S203( 500 0.000 10.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.  
   31.822 0.000 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0  
 16 2.000 25 1.000 3 -3.000 1 6.000 2 6.000  
 250 FOR U02S03(AQ) FROM NEA  
 U02S03(A 400 0.000 10.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.  
   -5.650 0.000 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0  
 16 1.000 25 1.000 3 1.000 1 -2.000  
 251 FOR U02S04(AQ) FROM NEA  
 U02S04(A 500 0.000 12.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.  
   -5.843 39.063 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0  
 16 1.000 25 1.000 3 2.000 1 -4.000 2 -2.000  
 252 FOR US04+2 FROM NEA  
 US04+2 200 2.000 10.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.  
   6.480 1.913 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0  
 16 1.000 25 1.000  
 253 FOR CLO- FROM NEA  
 CLO- 400 -1.000 2.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.  
   -57.935 0.000 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0  
 14 1.000 3 1.000 1 -2.000 2 -2.000  
 254 FOR CLO2- FROM NEA  
 CLO2- 400 -1.000 4.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.  
   -107.877 0.000 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0  
 14 1.000 3 2.000 1 -4.000 2 -4.000  
 255 FOR CLO3- FROM NEA  
 CLO3- 400 -1.000 6.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.  
   -146.242 220.127 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0  
 14 1.000 3 3.000 1 -6.000 2 -6.000  
 256 FOR CLO4- FROM NEA  
 CLO4- 400 -1.000 8.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.  
   -187.791 282.712 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0  
 14 1.000 3 4.000 1 -8.000 2 -8.000  
 257 FOR HCLO(AQ) FROM NEA  
 HCLO(AQ) 400 0.000 2.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.  
   -50.515 0.000 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0  
 14 1.000 3 1.000 1 -1.000 2 -2.000  
 258 FOR HCLO2(AQ) FROM NEA  
 HCLO2(AQ 400 0.000 4.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.  
   -105.916 0.000 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0  
 14 1.000 3 2.000 1 -3.000 2 -4.000  
 259 FOR UCL+3 FROM NEA  
 UCL+3 200 3.000 4.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.  
   1.720 -4.543 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0  
 14 1.000 25 1.000  
 260 FOR U02CL+ FROM NEA  
 U02CL+ 500 1.000 6.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.

-8.833 36.313 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0  
 14 1.000 25 1.000 3 2.000 1 -4.000 2 -2.000  
 261 FOR U02CL2(AQ) FROM NEA  
 U02CL2(A 500 0.000 6.000 .0.000 0.000 0.000 0.000 0.  
 -10.093 37.987 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0  
 14 2.000 25 1.000 3 2.000 1 -4.000 2 -2.000  
 262 FOR U02CL03+ FROM NEA  
 U02CL03+ 500 1.000 12.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.  
 -154.736 253.594 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0  
 14 1.000 25 1.000 3 5.000 1-10.000 2 -8.000  
 268 FOR PU+3 FROM HARWELL R12324  
 PU+3 200 3.000 3.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.  
 16.9 0.000 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0  
 29 1.000 2 1.000  
 269 FOR PU02+ FROM HARWELL R12324  
 PU02+ 400 1.000 5.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.  
 -18.600 46.230 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0  
 29 1.000 3 2.000 1 -4.000 2 -1.000  
 270 FOR PU02+2 FROM HARWELL R12324  
 PU02+2 400 2.000 6.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.  
 -34.900 0.000 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0  
 29 1.000 3 2.000 1 -4.000 2 -2.000  
 272 FOR (U02)2(OH)2+2 FROM NEA  
 (U02)2(O 400 2.000 12.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.  
 -23.617 77.803 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0  
 25 2.000 3 6.000 1-10.000 2 -4.000  
 273 FOR (U02)2OH+3 FROM NEA  
 (U02)2OH 400 3.000 12.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.  
 -20.787 0.000 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0  
 25 2.000 3 5.000 1 -9.000 2 -4.000  
 275 FOR (U02)3(OH)4+2 FROM NEA  
 (U02)3(O 400 2.000 18.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.  
 -38.880 0.000 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0  
 25 3.000 3 10.000 1-16.000 2 -6.000  
 276 FOR (U02)3(OH)5+ FROM NEA  
 (U02)3(O 400 1.000 18.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.  
 -42.540 126.423 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0  
 25 3.000 3 11.000 1-17.000 2 -6.000  
 278 FOR (U02)3(OH)7- FROM NEA  
 (U02)3(O 400 -1.000 18.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.  
 -57.981 0.000 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0  
 25 3.000 3 13.000 1-19.000 2 -6.000  
 279 FOR (U02)4(OH)7+ FROM NEA  
 (U02)4(O 400 1.000 24.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.  
 -57.874 0.000 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0  
 25 4.000 3 15.000 1-23.000 2 -8.000  
 282 FOR U(OH)4(AQ) FROM NEA  
 U(OH)4(A 300 0.000 4.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.  
 -4.479 0.000 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0  
 25 1.000 3 4.000 1 -4.000  
 285 FOR U+3 FROM NEA  
 U+3 200 3.000 3.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.  
 -8.615 24.414 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0  
 25 1.000 2 1.000  
 291 FOR U02(OH)2(AQ) FROM NEA  
 U02(OH)2 400 0.000 6.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.  
 -20.994 0.000 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0

25 1.000 3 4.000 1 -6.000 2 -2.000  
 292 FOR U02(OH)3- FROM NEA  
 U02(OH)3 400 -1.000 6.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.  
 -28.994 0.000 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0  
 25 1.000 3 5.000 1 -7.000 2 -2.000  
 293 FOR U02(OH)4-2 FROM NEA  
 U02(OH)4 400 -2.000 6.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.  
 -41.994 0.000 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0  
 25 1.000 3 6.000 1 -8.000 2 -2.000  
 296 FOR U02+ FROM NEA  
 U02+ 400 1.000 5.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.  
 -7.507 32.932 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0  
 25 1.000 3 2.000 1 -4.000 2 -1.000  
 297 FOR U02+2 FROM NEA  
 U02+2 400 2.000 6.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.  
 -8.993 34.400 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0  
 25 1.000 3 2.000 1 -4.000 2 -2.000  
 302 FOR U02OH+ FROM NEA  
 U02OH+ 400 1.000 6.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.  
 -14.193 44.723 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0  
 25 1.000 3 3.000 1 -5.000 2 -2.000  
 306 FOR U0H+3 FROM NEA  
 U0H+3 300 3.000 4.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.  
 -0.540 11.217 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0  
 25 1.000 3 1.000 1 -1.000  
 309 FOR (TCO(OH)2)2(AQ) FROM NEA  
 (TCO(OH)) 300 0.000 8.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.  
 -0.133 0.000 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0  
 24 2.000 1 -4.000 3 4.000  
 310 FOR H2TCO4(AQ) FROM NEA  
 H2TCO4(A 400 0.000 6.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.  
 -34.310 0.000 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0  
 24 1.000 1 -4.000 3 3.000 2 -2.000  
 311 FOR HTC04- FROM NEA  
 HTC04- 400 -1.000 6.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.  
 -34.608 0.000 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0  
 24 1.000 1 -5.000 3 3.000 2 -2.000  
 312 FOR TC+3 FROM NEA  
 TC+3 400 3.000 3.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.  
 5.391 0.000 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0  
 24 1.000 1 2.000 3 -1.000 2 1.000  
 313 FOR TCO(OH)2(AQ) FROM NEA  
 TCO(OH)2 300 0.000 4.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.  
 -3.325 0.000 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0  
 24 1.000 1 -2.000 3 2.000  
 315 FOR TCO4- FROM NEA  
 TCO4- 400 -1.000 7.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.  
 -32.993 102.109 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0  
 24 1.000 1 -6.000 3 3.000 2 -3.000  
 316 FOR TCO4-2 FROM NEA  
 TCO4-2 400 -2.000 6.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.  
 -43.315 0.000 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0  
 24 1.000 1 -6.000 3 3.000 2 -2.000  
 317 FOR TCO4-3 FROM NEA  
 TCO4-3 400 -3.000 5.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.  
 -53.287 0.000 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0  
 24 1.000 1 -6.000 3 3.000 2 -1.000  
 318 FOR TCOOH+ FROM NEA  
 TCOOH+ 300 1.000 4.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.  
 -1.137 0.000 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0  
 24 1.000 3 1.000 1 -1.000

320 FOR UF+3 FROM NEA  
UF+3      200    3.000    4.000    0.000    0.000    0.000    0.000    0.  
     9.280    0.191 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0  
     20    1.000 25    1.000

321 FOR UF2+2 FROM NEA  
UF2+2      200    2.000    4.000    0.000    0.000    0.000    0.000    0.  
     16.110   -4.853 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0  
     20    2.000 25    1.000

322 FOR UF3+ FROM NEA  
UF3+      200    1.000    4.000    0.000    0.000    0.000    0.000    0.  
     21.181   -6.297 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0  
     20    3.000 25    1.000

323 FOR UF4(AQ) FROM NEA  
UF4(AQ)    200    0.000    4.000    0.000    0.000    0.000    0.000    0.  
     25.451   -8.504 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0  
     20    4.000 25    1.000

324 FOR UF5- FROM NEA  
UF5-      200    -1.000    4.000    0.000    0.000    0.000    0.000    0.  
     27.031   0.000 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0  
     20    5.000 25    1.000

325 FOR UF6-2 FROM NEA  
UF6-2      200    -2.000    4.000    0.000    0.000    0.000    0.000    0.  
     29.101   0.000 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0  
     20    6.000 25    1.000

326 FOR U02F(AQ) FROM NEA  
U02F(AQ)   500    0.000    5.000    0.000    0.000    0.000    0.000    0.  
     -5.607   0.000 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0  
     20    1.000 25    1.000 3    2.000 1   -4.000 2   -1.000

327 FOR U02F+ FROM NEA  
U02F+      500    1.000    6.000    0.000    0.000    0.000    0.000    0.  
     -3.903   34.806 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0  
     20    1.000 25    1.000 3    2.000 1   -4.000 2   -2.000

328 FOR U02F2(AQ) FROM NEA  
U02F2(AQ)   500    0.000    6.000    0.000    0.000    0.000    0.000    0.  
     -0.373   34.495 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0  
     20    2.000 25    1.000 3    2.000 1   -4.000 2   -2.000

329 FOR U02F3- FROM NEA  
U02F3-      500    -1.000    6.000    0.000    0.000    0.000    0.000    0.  
     1.907   34.460 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0  
     20    3.000 25    1.000 3    2.000 1   -4.000 2   -2.000

330 FOR U02F4-2 FROM NEA  
U02F4-2      500    -2.000    6.000    0.000    0.000    0.000    0.000    0.  
     2.707   33.907 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0  
     20    4.000 25    1.000 3    2.000 1   -4.000 2   -2.000

331 FOR PU020H+ FROM HARWELL R12324  
PU020H+    400    1.000    6.000    0.000    0.000    0.000    0.000    0.  
     -40.5    0.0  
     29    1.000 1   -5.000 2   -2.000 3   3.000

332 FOR PU020H2 FROM HARWELL R12324  
PU020H2    400    0.000    6.000    0.000    0.000    0.000    0.000    0.  
     -45.3    0.0  
     29    1.000 1   -6.000 2   -2.000 3   4.000

333 FOR PU020H3- FROM HARWELL R12324  
PU020H3-   400    -1.000    6.000    0.000    0.000    0.000    0.000    0.  
     -54.9    0.0  
     29    1.000 1   -7.000 2   -2.000 3   5.000

334 FOR PU0H+3 FROM HARWELL R12324  
PU0H+3    300    3.000    4.000    0.000    0.000    0.000    0.000    0.  
     -1.19    0.0  
     29    1.000 1   -1.000 3   1.000

335 FOR PU0H2+2 FROM HARWELL R12324

PUOH2+2	300	2.000	4.000	0.000	0.000	0.000	0.
-	-1.79	0.0					
29	1.000	1 -2.000	3 2.000				
336	FOR PUOH3+	FROM HARWELL R12324					
PUOH3+	300	1.000	4.000	0.000	0.000	0.000	0.
-	-4.75	0.0					
29	1.000	1 -3.000	3 3.000				
337	FOR PU(OH)4	FROM HARWELL R12324					
PU(OH)4	300	0.000	4.000	0.000	0.000	0.000	0.
-	-10.54	0.0					
29	1.000	3 4.000	1 -4.000				
338	FOR PU(OH)5-	FROM HARWELL R12324					
PU(OH)5-	300	-1.000	4.000	0.000	0.000	0.000	0.
-	-99.0	0.0					
29	1.000	3 5.000	1 -5.000				
339	FOR PUOH2+	FROM HARWELL R12324					
PUOH2+	400	2.000	3.000	0.000	0.000	0.000	0.
-	9.9	0.0					
29	1.000	1 -1.000	2 1.000	3 1.000			
340	FOR PUOH2+	FROM HARWELL R12324					
PUOH2+	400	1.000	3.000	0.000	0.000	0.000	0.
-	-0.1	0.0					
29	1.000	1 -2.000	2 1.000	3 2.000			
341	FOR PU(OH)3	FROM HARWELL R12324					
PU(OH)3	400	0.000	3.000	0.000	0.000	0.000	0.
-	-9.6	0.0					
29	1.000	1 -3.000	2 1.000	3 3.000			
342	FOR PUOH4-	FROM HARWELL R12324					
PUOH4-	400	-1.000	3.000	0.000	0.000	0.000	0.
-	-20.1	0.0					
29	1.000	1 -4.000	2 1.000	3 4.000			
343	FOR AMOH2+	FROM BATTELLE-PNL					
AMOH2+	300	2.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.
-	-8.2	0.0					
28	1.000	3 1.000	1 -1.000				
344	FOR AM(OH)2+	FROM BATTELLE-PNL					
AM(OH)2+	300	1.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.
-	-17.1	0.0					
28	1.000	3 2.000	1 -2.000				
345	FOR AM(OH)3	FROM BATTELLE-PNL					
AM(OH)3	300	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.
-	-28.5	0.0					
28	1.000	3 3.000	1 -3.000				
346							
NDOH2+	300	2.000	3.000	0.000	0.000	0.000	0.
-	-8.0	0.0					
44	1.000	3 1.000	1 -1.000				
347							
ND(OH)2+	300	1.000	3.000	0.000	0.000	0.000	0.
-	-16.9	0.0					
44	1.000	3 2.000	1 -2.000				
348							
ND(OH)3	300	0.000	3.000	0.000	0.000	0.000	0.
-	-26.5	0.0					
44	1.000	3 3.000	1 -3.000				
349							
ND(OH)4-	300	-1.00	3.000	0.000	0.000	0.000	0.
-	-37.1	0.0					
44	1.000	3 4.000	1 -4.000				
350							
ND2(OH)2	300	4.000	6.000	0.000	0.000	0.000	0.

-13.9	0.0						
44	2.000	3	2.000	1	-2.000		
353 FOR NI(OH)2 FROM HARWELL R12324							
NI(OH)2	300	0.000	0.0	0.0	0.0	0.0	2.
-19.0	0.0						
31	1.000	3	2.000	1	-2.000		
354 FOR NI(OH)3- FROM HARWELL R12324							
NI(OH)3-	300	-1.000	0.0	0.0	0.0	0.0	3.
-30.0	0.0						
31	1.000	3	3.000	1	-3.000		
355 FOR NIOH+ FROM HARWELL R12324							
NIOH+	300	1.000	0.0	0.0	0.0	0.0	1.
-9.9	0.0						
31	1.000	3	1.000	1	-1.000		
356 FOR NI2(OH)+3 FROM HARWELL R12324							
NI2(OH)+	300	3.000	0.0	0.0	0.0	0.0	1.
-10.7	0.0						
31	2.000	3	1.000	1	-1.000		
357 FOR NI4(OH)4+4 FROM HARWELL R12324							
NI4(OH)+	300	4.000	0.0	0.0	0.0	0.0	4.
-27.7	0.0						
31	4.000	3	4.000	1	-4.000		
358 FOR NISO4 FROM HARWELL R12324							
NISO4	200	0.000	0.0	0.0	0.0	0.0	2.
2.3	0.0						
31	1.000	16	1.000				
359 FOR SE-2 FROM HARWELL R12324							
SE-2	400	-2.000	-2.0	0.0	0.0	0.0	2.
66.3	0.0						
32	1.000	1	8.000	2	8.000	3	-4.000
360 FOR HSE- FROM HARWELL R12324							
HSE-	400	-1.000	-2.0	0.0	0.0	0.0	1.
81.2	0.0						
32	1.000	1	9.000	2	8.000	3	-4.000
361 FOR SE03-2 FROM HARWELL R12324							
SE03-2	400	-2.000	4.0	0.0	0.0	0.0	2.
29.0	0.0						
32	1.000	1	2.000	2	2.000	3	-1.000
362 FOR HSE03- FROM HARWELL R12324							
HSE03-	400	-1.000	4.0	0.0	0.0	0.0	1.
36.3	0.0						
32	1.000	1	3.000	2	2.000	3	-1.000
363 FOR HSE04- FROM HARWELL R12324							
HSE04-	200	-1.000	6.0	0.0	0.0	0.0	1.
1.9	0.0						
32	1.000	1	1.000				
364 FOR H2SE03 FROM HARWELL R12324							
H2SE03	400	0.000	4.0	0.0	0.0	0.0	0.
38.9	0.0						
32	1.000	1	4.000	2	2.000	3	-1.000
365 FOR H2SE FROM HARWELL R12324							
H2SE	400	0.000	-2.0	0.0	0.0	0.0	0.
85.1	0.0						
32	1.000	1	10.000	2	8.000	3	-4.000
366 FOR SR(OH)2 FROM HARWELL R12324							
SR(OH)2	300	0.000	0.0	0.0	0.0	0.0	0.
-28.5	0.0						
12	1.000	3	2.000	1	-2.000		
367 FOR SRCL+1 FROM HARWELL R12324							
SRCL+1	200	1.000	0.0	0.0	0.0	0.0	0.
-0.2	0.0						

12	1.000	14	1.000					
368	FOR SRCL2	FROM HARWELL	R12324					
SRCL2	200	0.000	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.
0.0	0.0							
12	1.000	14	2.000					
369	FOR SRN03+	FROM HARWELL	R12324					
SRN03+	200	1.000	5.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.
0.8	0.0							
12	1.000	17	1.000					
370	FOR SRP04-	FROM HARWELL	R12324					
SRP04-	200	-1.000	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.
4.2	0.0							
12	1.000	19	1.000					
371	FOR ZROH+3	FROM HARWELL	R12324					
ZROH+3	300	3.000	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	1.
0.3	0.0							
33	1.000	3	1.000	1 -1.000				
372	FOR ZR(OH)4	FROM HARWELL	R12324					
ZR(OH)4	300	0.000	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	4.
-9.7	0.0							
33	1.000	3	4.000	1 -4.000				
373	FOR ZR(OH)5-	FROM HARWELL	R12324					
ZR(OH)5-	300	-1.000	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	5.
-16.0	0.0							
33	1.000	3	5.000	1 -5.000				
374	FOR ZR3(OH)4+8	FROM HARWELL	R12324					
ZR3(OH)4	300	8.000	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	4.
-0.6	0.0							
33	3.000	3	4.000	1 -4.000				
375	FOR ZR4(OH)8+8	FROM HARWELL	R12324					
ZR4(OH)8	300	8.000	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	8.
6.0	0.0							
33	4.000	3	8.000	1 -8.000				
376	FOR ZRS04+2	FROM HARWELL	R12324					
ZRS04+2	200	2.000	6.0	0.0	0.0	0.0	0.0	1.
2.5	0.0							
33	1.000	16	1.000					
377	FOR ZRCL+3	FROM HARWELL	R12324					
ZRCL+3	200	3.000	6.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.
0.3	0.0							
33	1.000	14	1.000					
378	FOR SN+4	FROM EQ3/6 DATA0.3245R54						
SN+4	200	4.000	4.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.
-5.38	0.0							
34	1.000	2	-2.000					
379	FOR SNOH+	FROM EQ3/6 DATA0.3245R54						
SNOH+	300	1.000	2.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.
-3.89	0.0							
34	1.000	3	1.000	1 -1.000				
380	FOR SN(OH)2	FROM EQ3/6 DATA0.3245R54						
SN(OH)2	300	0.000	2.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.
-7.90	0.0							
34	1.000	3	2.000	1 -2.000				
381	FOR SN(OH)3-	FROM EQ3/6 DATA0.3245R54						
SN(OH)3-	300	-1.000	2.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.
-17.39	0.0							
34	1.000	3	3.000	1 -3.000				
382	FOR SN(OH)2+2	FROM EQ3/6 DATA0.3245R54						
SN(OH)22	400	2.000	4.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.
-5.56	0.0							
34	1.000	3	2.000	1 -2.000	2 -2.000			

383 FOR SN(OH)3+ FROM EQ3/6 DATA0.3245R54  
 SN(OH)3+ 400 1.000 4.0 0.0 0.0 0.0 0.  
   -4.85 0.0  
   34 1.000 3 3.000 1 -3.000 2 -2.000  
 384 FOR SNCL+ FROM EQ3/6 DATA0.3245R54  
 SNCL+ 200 1.000 2.0 0.0 0.0 0.0 0.  
   1.05 0.0  
   34 1.000 14 1.000  
 385 FOR SNCL2 FROM EQ3/6 DATA0.3245R54  
 SNCL2 200 0.000 2.0 0.0 0.0 0.0 0.  
   1.71 0.0  
   34 1.000 14 2.000  
 386 FOR SNCL3- FROM EQ3/6 DATA0.3245R54  
 SNCL3- 200 -1.000 2.0 0.0 0.0 0.0 0.  
   1.69 0.0  
   34 1.000 14 3.000  
 387 FOR I3- FROM HARWELL R12324  
 I3- 200 -1.000 -3.0 0.0 0.0 0.0 0.  
   -18.3 28.5  
   23 3.000 2 -2.000  
 388 FOR HI FROM HARWELL R12324  
 HI 200 0.000 -1.0 0.0 0.0 0.0 0.  
   -0.051 0.41  
   23 1.000 1 1.000  
 389 FOR IO- FROM HARWELL R12324  
 IO- 400 -1.000 1.0 0.0 0.0 0.0 0.  
   -44.0 56.2  
   23 1.000 3 1.000 1 -2.000 2 -2.000  
 390 FOR IO4- FROM HARWELL R12324  
 IO4- 400 -1.000 7.0 0.0 0.0 0.0 0.  
   -165.0 251.0  
   23 1.000 3 4.000 1 -8.000 2 -8.000  
 391 FOR I2O-2 FROM HARWELL R12324  
 I2O-2 400 -2.000 0.0 0.0 0.0 0.0 0.  
   -45.30 0.0  
   23 2.000 3 1.000 1 -2.000 2 -2.000  
 392 FOR H1O FROM HARWELL R12324  
 H1O 400 0.000 1.0 0.0 0.0 0.0 0.  
   -33.3 48.9  
   23 1.000 3 1.000 1 -1.000 2 -2.000  
 393 FOR H2OI- FROM HARWELL R12324  
 H2OI- 200 -1.000 -1.0 0.0 0.0 0.0 0.  
   -32.10 0.0  
   23 1.000 3 1.000  
 394 FOR I2OH- FROM HARWELL R12324  
 I2OH- 400 -1.000 0.0 0.0 0.0 0.0 1.  
   -19.4 0.0  
   23 2.000 3 1.000 1 -1.000 2 -2.000  
 395 FOR H1O3 FROM HARWELL R12324  
 H1O3 400 0.000 5.0 0.0 0.0 0.0 0.  
   -111.0 168.0  
   23 1.000 3 3.000 1 -5.000 2 -6.000  
 396 FOR I2CL- FROM HARWELL R12324  
 I2CL- 300 -1.000 0.0 0.0 0.0 0.0 0.  
   -20.8 34.2  
   23 2.000 14 1.000 2 -2.000  
 397 FOR ICL- FROM HARWELL R12324  
 ICL- 300 -1.000 0.0 0.0 0.0 0.0 0.  
   -29.0 0.0  
   23 1.000 14 1.000 2 -1.000  
 398 FOR ICL2- FROM HARWELL R12324

ICL2-	300	-1.000	1.0	0.0	0.0	0.0	0.
	-26.9	0.0					
23	1.000	14	2.000	2	-2.000		
399	FOR I2	FROM HARWELL R12324					
I2	200	0.000	0.0	0.0	0.0	0.0	0.
	-18.18	27.2					
23	2.000	2	-2.000				
400	FOR PBOH+	FROM HARWELL R12324					
PBOH+	300	1.000	2.0	0.0	0.0	0.0	1.
	-7.7	0.0					
36	1.000	3	1.000	1	-1.000		
401	FOR PB(OH)2	FROM HARWELL R12324					
PB(OH)2	300	0.000	2.0	0.0	0.0	0.0	2.
	-17.1	0.0					
36	1.000	3	2.000	1	-2.000		
402	FOR PB(OH)3-	FROM HARWELL R12324					
PB(OH)3-	300	-1.000	2.0	0.0	0.0	0.0	3.
	-27.3	0.0					
36	1.000	3	3.000	1	-3.000		
403	FOR PB2(OH)+3	FROM HARWELL R12324					
PB2(OH)	300	3.000	4.0	0.0	0.0	0.0	1.
	-6.4	0.0					
36	2.000	3	1.000	1	-1.000		
404	FOR PB3(OH)4+2	FROM HARWELL R12324					
PB3(OH)4	300	2.000	6.0	0.0	0.0	0.0	4.
	-23.9	0.0					
36	3.000	3	4.000	1	-4.000		
405	FOR PB6(OH)8+4	FROM HARWELL R12324					
PB6(OH)8	300	4.000	12.0	0.0	0.0	0.0	8.
	-43.6	0.0					
36	6.000	3	8.000	1	-8.000		
406	FOR PBCO3	FROM HARWELL R12324					
PBCO3	200	0.000	6.0	0.0	0.0	0.0	2.
	7.3	0.0					
36	1.000	15	1.000				
407	FOR PB(CO3)2-2	FROM HARWELL R12324					
PB(CO3)2	200	-2.000	10.0	0.0	0.0	0.0	4.
	10.78	0.0					
36	1.000	15	2.000				
408	FOR PBSO4	FROM HARWELL R12324					
PBSO4	200	0.000	8.0	0.0	0.0	0.0	0.
	2.59	0.0					
36	1.000	16	1.000				
409	FOR PB(SO4)2-2	FROM HARWELL R12324					
PB(SO4)2	200	-2.000	14.0	0.0	0.0	0.0	0.
	3.5	0.0					
36	1.000	16	2.000				
410	FOR PBCL+	FROM HARWELL R12324					
PBCL+	200	1.000	2.0	0.0	0.0	0.0	0.
	1.61	0.0					
36	1.000	14	1.000				
411	FOR PBCL2	FROM HARWELL R12324					
PBCL2	200	0.000	2.0	0.0	0.0	0.0	0.
	2.44	0.0					
36	1.000	14	2.000				
412	FOR PBCL3-	FROM HARWELL R12324					
PBCL3-	200	-1.000	2.0	0.0	0.0	0.0	0.
	2.01	0.0					
36	1.000	14	3.000				
413	FOR PB4(OH)4+4	FROM HARWELL R12324					
PB4(OH)+	300	4.000	8.0	0.0	0.0	0.0	4.

-20.88	0.0						
36	4.000	3	4.000	1	-4.000		
424	FOR RAOH+	FROM HARWELL	R12324				
RAOH+	300	1.000	0.0	0.0	0.0	0.0	1.
-13.6	0.0						
37	1.000	3	1.000	1	-1.000		
425	FOR RAS04	FROM HARWELL	R12324				
RAS04	200	0.000	6.0	0.0	0.0	0.0	0.
0.022	0.0						
37	1.000	16	1.000				
426	FOR THOH+3	FROM HARWELL	R12324				
THOH+3	300	3.000	0.0	0.0	0.0	0.0	1.
-3.20	0.0						
38	1.000	3	1.000	1	-1.000		
427	FOR TH(OH)2+2	FROM HARWELL	R12324				
TH(OH)2+	300	2.000	0.0	0.0	0.0	0.0	2.
-6.9	0.0						
38	1.000	3	2.000	1	-2.000		
428	FOR TH(OH)3+	FROM HARWELL	R12324				
TH(OH)3+	300	1.000	0.0	0.0	0.0	0.0	3.
-11.70	0.0						
38	1.000	3	3.000	1	-3.000		
429	FOR TH(OH)4	FROM HARWELL	R12324				
TH(OH)4	300	0.000	0.0	0.0	0.0	0.0	4.
-15.87	18.66						
38	1.000	3	4.000	1	-4.000		
430	FOR TH4(OH)8+8	FROM HARWELL	R12324				
TH4(OH)8	300	8.000	0.0	0.0	0.0	0.0	8.
-21.10	0.0						
38	4.000	3	8.000	1	-8.000		
431	FOR TH2(OH)2+6	FROM HARWELL	R12324				
TH2(OH)2	300	6.000	0.0	0.0	0.0	0.0	2.
-6.14	0.0						
38	2.000	3	2.000	1	-2.000		
432	FOR THCO3+2	FROM HARWELL	R12324				
THCO3+2	200	2.000	0.0	0.0	0.0	0.0	2.
11.03	0.0						
38	1.000	15	1.000				
433	FOR THHP04+2	FROM HARWELL	R12324				
THHP04+2	300	2.000	0.0	0.0	0.0	0.0	2.
23.16	0.0						
38	1.000	19	1.000	1	1.000		
434	FOR TH(HPO4)2	FROM HARWELL	R12324				
TH(HPO4)	300	0.000	0.0	0.0	0.0	0.0	4.
47.49	0.0						
38	1.000	19	2.000	1	2.000		
435	FOR TH(HPO4)3-2	FROM HARWELL	R12324				
THHPO43-	300	-2.000	0.0	0.0	0.0	0.0	6.
68.30	0.0						
38	1.000	19	3.000	1	3.000		
436	FOR THH2P04+3	FROM HARWELL	R12324				
THH2P04+	300	3.000	0.0	0.0	0.0	0.0	1.
24.19	0.0						
38	1.000	19	1.000	1	2.000		
437	FOR THH2P042+2	FROM HARWELL	R12324				
THH2P042	300	2.000	0.0	0.0	0.0	0.0	2.
48.0	0.0						
38	1.000	19	2.000	1	4.000		
438	FOR THH3P04+4	FROM HARWELL	R12324				
THH3P04+	300	4.000	0.0	0.0	0.0	0.0	0.
23.6	0.0						

38	1.000	19	1.000	1	3.000			
439	FOR THS04+2	FROM HARWELL	R12324					
THS04+2	200		2.000	6.0		0.0	0.0	0.0
5.441			0.0					2.
38	1.000	16	1.000					
440	FOR TH(SO4)2	FROM HARWELL	R12324					
TH(SO4)2	200		0.000	12.0		0.0	0.0	0.0
9.75			0.0					4.
38	1.000	16	2.000					
441	FOR TH(SO4)3-2	FROM HARWELL	R12324					
TH(SO4)3-	200		-2.000	18.0		0.0	0.0	0.0
10.46			0.0					6.
38	1.000	16	3.000					
442	FOR TH(SO4)4-4	FROM HARWELL	R12324					
TH(SO4)4	200		-4.000	24.0		0.0	0.0	0.0
8.44			0.0					8.
38	1.000	16	4.000					
443	FOR THCL4	FROM HARWELL	R12324					
THCL4	200		0.000	0.0		0.0	0.0	0.0
1.24			0.0					0.
38	1.000	14	4.000					
444	FOR THCL3+	FROM HARWELL	R12324					
THCL3+	200		1.000	0.0		0.0	0.0	0.0
1.67			0.0					0.
38	1.000	14	3.000					
445	FOR THCL2+2	FROM HARWELL	R12324					
THCL2+2	200		2.000	0.0		0.0	0.0	0.0
0.76			0.0					0.
38	1.000	14	2.000					
446	FOR THCL+3	FROM HARWELL	R12324					
THCL+3	200		3.000	0.0		0.0	0.0	0.0
1.38			0.0					0.
38	1.000	14	1.000					
447	FOR THF4	FROM HARWELL	R12324					
THF4	200		0.000	0.0		0.0	0.0	0.0
23.2			0.0					0.
38	1.000	20	4.000					
448	FOR TH(N03)+3	FROM HARWELL	R12324					
TH(N03)+	200		3.000	5.0		0.0	0.0	0.0
1.6			0.0					0.
38	1.000	17	1.000					
449	FOR TH(N03)2+2	FROM HARWELL	R12324					
TH(N03)2	200		2.000	10.0		0.0	0.0	0.0
2.84			0.0					0.
38	1.000	17	2.000					
450	FOR TH4(N03)3+	FROM HARWELL	R12324					
TH4(N03)	200		1.000	15.0		0.0	0.0	0.0
2.00			0.0					0.
38	1.000	17	3.000					
451	FOR TH(N03)4	FROM HARWELL	R12324					
TH(N03)4	200		0.000	20.0		0.0	0.0	0.0
1.0			0.0					0.
38	1.000	17	4.000					
452	FOR PA+3	FROM HARWELL	R12324					
PA+3	200		3.000	3.0		0.0	0.0	0.0
2.03			0.0					0.
39	1.000	2	1.000					
453	FOR PA02+	FROM HARWELL	R12324					
PA02+	400		1.000	5.0		0.0	0.0	0.0
7.79			0.0					0.
39	1.000	3	2.000	1 -4.000	2 -1.000			

454 FOR PA(OH)+3 FROM HARWELL R12324  
 PA(OH)+3 300 3.000 4.0 0.0 0.0 0.0 1.  
   0.84 0.0  
   39 1.000 3 1.000 1 -1.000  
 455 FOR PA(OH)2+2 FROM HARWELL R12324  
 PA(OH)2+ 300 2.000 4.0 0.0 0.0 0.0 2.  
   -0.02 0.0  
   39 1.000 3 2.000 1 -2.000  
 456 FOR PA(OH)3+ FROM HARWELL R12324  
 PA(OH)3+ 300 1.000 4.0 0.0 0.0 0.0 3.  
   -1.5 0.0  
   39 1.000 3 3.000 1 -3.000  
 457 FOR PAO(OH)+2 FROM HARWELL R12324  
 PAO(OH)+ 400 2.000 5.0 0.0 0.0 0.0 1.  
   7.29 0.0  
   39 1.000 3 2.000 2 -1.000 1 -3.000  
 458 FOR PAO2(OH) FROM HARWELL R12324  
 PAO2(OH) 400 0.000 5.0 0.0 0.0 0.0 1.  
   3.29 0.0  
   39 1.000 3 3.000 2 -1.000 1 -5.000  
 484 FOR NPO2+ FROM HARWELL R12324  
 NPO2+ 400 1.000 5.0 0.0 0.0 0.0 0.  
   -11.37 35.73  
   40 1.000 3 2.000 1 -4.000 2 -1.000  
 485 FOR NPO2+2 FROM HARWELL R12324  
 NPO2+2 400 2.000 6.0 0.0 0.0 0.0 0.  
   -32.29 0.0  
   40 1.000 1 -4.000 2 -2.000 3 2.000  
 486 FOR NP+3 FROM HARWELL R12324  
 NP+3 200 3.000 3.0 0.0 0.0 0.0 0.  
   3.03 0.0  
   40 1.000 2 1.000  
 487 FOR NPOH+2 FROM HARWELL R12324  
 NPOH+2 400 2.000 3.0 0.0 0.0 0.0 0.  
   -4.37 0.0  
   40 1.000 3 1.000 1 -1.000 2 1.000  
 488 FOR NP(OH)2+ FROM HARWELL R12324  
 NP(OH)2+ 400 1.000 3.0 0.0 0.0 0.0 0.  
   -13.97 0.0  
   40 1.000 1 -2.000 2 1.000 3 2.000  
 489 FOR NP(OH)3 FROM HARWELL R12324  
 NP(OH)3 400 0.000 3.0 0.0 0.0 0.0 0.  
   -23.97 0.0  
   40 1.000 1 -3.000 2 1.000 3 3.000  
 490 FOR NP(OH)4- FROM HARWELL R12324  
 NP(OH)4- 400 -1.000 3.0 0.0 0.0 0.0 0.  
   -34.97 0.0  
   40 1.000 1 -4.000 2 1.000 3 4.000  
 491 FOR NP2(OH)2+4 FROM HARWELL R12324  
 NP2(OH)2 400 4.000 6.0 0.0 0.0 0.0 0.  
   -7.43 0.0  
   40 2.000 1 -2.000 2 2.000 3 2.000  
 492 FOR NPCO3+ FROM HARWELL R12324  
 NPCO3+ 300 1.000 7.0 0.0 0.0 0.0 0.  
   9.53 0.0  
   40 1.000 2 1.000 15 1.000  
 493 FOR NP(CO3)2- FROM HARWELL R12324  
 NP(CO3)2 300 -1.000 11.0 0.0 0.0 0.0 0.  
   14.03 0.0  
   40 1.000 2 1.000 15 2.000  
 494 FOR NP(CO3)3-3 FROM HARWELL R12324

NP(CO3)3	300	-3.000	15.0	0.0	0.0	0.0	0.
17.53	0.0						
40	1.000	2	1.000 15	3.000			
495	FOR NPCL+2	FROM HARWELL	R12324				
NPCL+2	300	2.000	3.0	0.0	0.0	0.0	0.
0.63	0.0						
40	1.000	2	1.000 14	1.000			
496	FOR NPCL2+	FROM HARWELL	R12324				
NPCL2+	300	1.000	3.0	0.0	0.0	0.0	0.
-2.35	0.0						
40	1.000	2	1.000 14	2.000			
497	FOR NPOH+3	FROM HARWELL	R12324				
NPOH+3	300	3.000	4.0	0.0	0.0	0.0	0.
-1.5	0.0						
40	1.000	1	-1.000	3	1.000		
498	FOR NP(OH)2+2	FROM HARWELL	R12324				
NP(OH)2+2	300	2.000	4.0	0.0	0.0	0.0	0.
-3.0	0.0						
40	1.000	1	-2.000	3	2.000		
499	FOR NP(OH)3+	FROM HARWELL	R12324				
NP(OH)3+	300	1.000	4.0	0.0	0.0	0.0	0.
-6.0	0.0						
40	1.000	1	-3.000	3	3.000		
500	FOR NP(OH)4	FROM HARWELL	R12324				
NP(OH)4	300	0.000	4.0	0.0	0.0	0.0	0.
-9.0	0.0						
40	1.000	1	-4.000	3	4.000		
502	FOR NP2(OH)2+6	FROM HARWELL	R12324				
NP2OH2+6	300	6.000	8.0	0.0	0.0	0.0	0.
-2.0	0.0						
40	2.000	1	-2.000	3	2.000		
503	FOR NP(OH)3C03-	FROM HARWELL	R12324				
NPOH3C03	400	-1.000	8.0	0.0	0.0	0.0	0.
-1.0	0.0						
40	1.000	1	-3.000	3	3.000 15	1.000	.
504	FOR NPSO4+2	FROM HARWELL	R12324				
NPSO4+2	200	2.000	10.0	0.0	0.0	0.0	0.
3.41	0.0						
40	1.000	16	1.000				
505	FOR NP(SO4)2	FROM HARWELL	R12324				
NP(SO4)2	200	0.000	16.0	0.0	0.0	0.0	0.
5.42	0.0						
40	1.000	16	2.000				
506	FOR NPCL+3	FROM HARWELL	R12324				
NPCL+3	200	3.000	4.0	0.0	0.0	0.0	0.
-0.04	0.0						
40	1.000	14	1.000				
507	FOR NPCL2+2	FROM HARWELL	R12324				
NPCL2+2	200	2.000	4.0	0.0	0.0	0.0	0.
-0.24	0.0						
40	1.000	14	2.000				
508	FOR NPCL3+	FROM HARWELL	R12324				
NPCL3+	200	1.000	4.0	0.0	0.0	0.0	0.
-0.5	0.0						
40	1.000	14	3.000				
509	FOR NPO2OH	FROM HARWELL	R12324				
NPO2OH	400	0.000	5.0	0.0	0.0	0.0	1.

-24.50 0.0  
 40 1.000 1 -5.000 2 -1.000 3 3.000  
 510 FOR NPO2(OH)2- FROM HARWELL R12324  
 NPO2OH2- 400 -1.000 5.0 0.0 0.0 0.0 0.0 2.  
 -36.15 0.0  
 40 1.000 1 -6.000 2 -1.000 3 4.000  
 511 FOR NPO2CL FROM HARWELL R12324  
 NPO2CL 500 0.000 5.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.  
 -11.67 0.0  
 40 1.000 1 -4.000 2 -1.000 3 2.000 14 1:000  
 512 FOR NPO2HC03 FROM HARWELL R12324  
 NPO2HC03 500 0.000 9.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.  
 2.05 0.0  
 40 1.000 1 -3.000 2 -1.000 3 2.000 15 1.000  
 513 FOR NPO2C03- FROM HARWELL R12324  
 NPO2C03- 500 -1.000 9.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.  
 -6.48 0.0  
 40 1.000 1 -4.000 2 -1.000 3 2.000 15 1.000  
 514 FOR NPO2(C03)2-3 FROM HARWELL R12324  
 NPO2C032 500 -3.000 13.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.  
 -4.26 0.0  
 40 1.000 1 -4.000 2 -1.000 3 2.000 15 2.000  
 515 FOR NPO2(C03)3-5 FROM HARWELL R12324  
 NPO2C033 500 -5.000 17.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.  
 -4.03 0.0  
 40 1.000 1 -4.000 2 -1.000 3 2.000 15 3.000  
 516 FOR NPO2OH+ FROM HARWELL R12324  
 NPO2OH 400 1.000 6.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.  
 -37.39 0.0  
 40 1.000 1 -5.000 2 -2.000 3 3.000  
 517 FOR NPO2(OH)2 FROM HARWELL R12324  
 NPO2OH2 400 0.000 6.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.  
 -43.81 0.0  
 40 1.000 1 -6.000 2 -2.000 3 4.000  
 518 FOR NPO2(OH)3- FROM HARWELL R12324  
 NPO2OH3- 400 -1.000 6.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.  
 -53.99 0.0  
 40 1.000 1 -7.000 2 -2.000 3 5.000  
 519 FOR NPO2(OH)2+2 FROM HARWELL R12324  
 NPO2OH2+ 400 2.000 12.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.  
 -70.98 0.0  
 40 2.000 1 -10.000 2 -4.000 3 6.000  
 520 FOR (NPO2)3(OH)5+ FROM HARWELL R12324  
 NPO23OH5 400 1.000 18.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.  
 -114.37 0.0  
 40 3.000 1 -17.000 2 -6.000 3 11.000  
 521 FOR (NPO2)2OH+3 FROM HARWELL R12324  
 NPO22OH+ 400 3.000 12.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.  
 -68.58 0.0  
 40 2.000 1 -9.000 2 -4.000 3 5.000  
 522 FOR NPO2C03 FROM HARWELL R12324  
 NPO2C03 500 0.000 10.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.  
 -22.29 0.0  
 40 1.000 1 -4.000 2 -2.000 3 2.000 15 1.000  
 523 FOR NPO2(C03)2-2 FROM HARWELL R12324  
 NPO2C032 500 -2.000 14.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.  
 -15.29 0.0  
 40 1.000 1 -4.000 2 -2.000 3 2.000 15 2.000  
 524 FOR NPO2(C03)3-4 FROM HARWELL R12324  
 NPO2C033 500 -4.000 18.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.  
 -11.29 0.0

40 1.000 1 -4.000 2 -2.000 3 2.000 15 3.000  
 525 FOR NP02S04 FROM HARWELL R12324  
 NP02S04 500 0.000 12.0 0.0 0.0 0.0 0.  
 -29.02 0.0  
 40 1.000 1 -4.000 2 -2.000 3 2.000 16 1.000  
 526 FOR NP02(S04)2-2 FROM HARWELL R12324  
 NP02S042 500 -2.000 18.0 0.0 0.0 0.0 0.  
 -28.19 0.0  
 40 1.000 1 -4.000 2 -2.000 3 2.000 16 2.000  
 527 FOR NP02(S04)3-4 FROM HARWELL R12324  
 NP02S043 500 -4.000 24.0 0.0 0.0 0.0 0.  
 -27.29 0.0  
 40 1.000 1 -4.000 2 -2.000 3 2.000 16 3.000  
 528 FOR NP02CL+ FROM HARWELL R12324  
 NP02CL+ 500 1.000 6.0 0.0 0.0 0.0 0.  
 -32.59 0.0  
 40 1.000 1 -4.000 2 -2.000 3 2.000 14 1.000  
 529 FOR NP02CL2 FROM HARWELL R12324  
 NP02CL2 500 0.000 6.0 0.0 0.0 0.0 0.  
 -31.29 0.0  
 40 1.000 1 -4.000 2 -2.000 3 2.000 14 2.000  
 530 FOR NP02F FROM HARWELL R12324  
 NP02F 500 0.000 5.0 0.0 0.0 0.0 0.  
 -10.38 0.0  
 40 1.000 3 2.000 1 -4.000 2 -1.000 20 1.000  
 531 FOR NPF+3 FROM HARWELL R12324  
 NPF+3 200 3.000 4.0 0.0 0.0 0.0 0.  
 8.33 0.0  
 40 1.000 20 1.000  
 532 FOR NPF2+2 FROM HARWELL R12324  
 NPF2+2 200 2.000 4.0 0.0 0.0 0.0 0.  
 14.59 0.0  
 40 1.000 20 2.000  
 533 FOR NPF3+ FROM HARWELL R12324  
 NPF3+ 200 1.000 4.0 0.0 0.0 0.0 0.  
 20.3 0.0  
 40 1.000 20 3.000  
 534 FOR NPF4 FROM HARWELL R12324  
 NPF4 200 0.000 4.0 0.0 0.0 0.0 0.  
 25.1 0.0  
 40 1.000 20 4.000  
 535 FOR (PU02)2(OH)2+2 FROM HARWELL R12324  
 PU0220H2 400 2.000 12.0 0.0 0.0 0.0 0.  
 -78.2 0.0  
 29 2.000 1-10.000 2 -4.000 3 6.000  
 536 FOR (PU02)3(OH)5+ FROM HARWELL R12324  
 PU0230H5 400 1.000 18.0 0.0 0.0 0.0 0.  
 -126.3 0.0  
 29 3.000 1-17.000 2 -6.000 3 11.000  
 537 FOR (PU02)3(OH)4+2 FROM HARWELL R12324  
 PU0230H4 400 2.000 18.0 0.0 0.0 0.0 0.  
 -109.7 0.0  
 29 3.000 1-16.000 2 -6.000 3 10.000  
 538 FOR PU02C03 FROM HARWELL R12324  
 PU02C03 500 0.000 10.0 0.0 0.0 0.0 0.  
 -22.9 0.0  
 29 1.000 1 -4.000 2 -2.000 3 2.000 15 1.000  
 539 FOR PU02(C03)2-2 FROM HARWELL R12324  
 PU02C032 500 -2.000 14.0 0.0 0.0 0.0 0.  
 -19.9 0.0  
 29 1.000 1 -4.000 2 -2.000 3 2.000 15 2.000

540 FOR PU02(CO3)3-4 FROM HARWELL R12324  
 PU02CO33 500 -4.000 18.0 0.0 0.0 0.0 0.  
     -14.0 0.0  
 29 1.000 1 -4.000 2 -2.000 3 2.000 15 3.000  
 541 FOR PU02(OH)CO3- FROM HARWELL R12324.  
 PU02OHCO 500 -1.000 10.0 0.0 0.0 0.0 0.  
     -25.05 0.0  
 29 1.000 1 -5.000 2 -2.000 3 3.000 15 1.000  
 542 FOR PU02(OH)2CO3-2 FROM HARWELL R12324  
 PU02OH2C 500 -2.000 10.0 0.0 0.0 0.0 0.  
     -39.9 0.0  
 29 1.000 1 -6.000 2 -2.000 3 4.000 15 1.000  
 543 FOR PU02H(CO2)- FROM HARWELL R12324  
 PU02HCO2 500 -1.000 14.0 0.0 0.0 0.0 0.  
     -12.6 0.0  
 29 1.000 1 -3.000 2 -2.000 3 2.000 15 2.000  
 544 FOR PU02CL+ FROM HARWELL R12324  
 PU02CL+ 500 1.000 6.0 0.0 0.0 0.0 0.  
     -35.2 0.0  
 29 1.000 1 -4.000 2 -2.000 3 2.000 14 1.000  
 545 FOR PU02CL2 FROM HARWELL R12324  
 PU02CL2 500 0.000 6.0 0.0 0.0 0.0 0.  
     -35.15 0.0  
 29 1.000 1 -4.000 2 -2.000 3 2.000 14 2.000  
 546 FOR PU02SO4 FROM HARWELL R12324  
 PU02SO4 500 0.000 12.0 0.0 0.0 0.0 0.  
     -31.7 0.0  
 29 1.000 1 -4.000 2 -2.000 3 2.000 16 1.000  
 547 FOR PU02OH FROM HARWELL R12324  
 PU02OH 400 0.000 5.0 0.0 0.0 0.0 0.  
     -28.3 0.0  
 29 1.000 1 -5.000 2 -1.000 3 3.000  
 548 FOR PU02(OH)2- FROM HARWELL R12324  
 PU02OH2- 400 -1.000 5.0 0.0 0.0 0.0 0.  
     -37.6 0.0  
 29 1.000 1 -6.000 2 -1.000 3 4.000  
 549 FOR PU02CL FROM HARWELL R12324  
 PU02CL 500 0.000 5.0 0.0 0.0 0.0 0.  
     -18.77 0.0  
 29 1.000 1 -4.000 2 -1.000 3 2.000 14 1.000  
 550 FOR PU2(OH)2+6 FROM HARWELL R12324  
 PU2OH2+6 300 6.000 8.0 0.0 0.0 0.0 0.  
     -1.0 0.0  
 29 2.000 1 -2.000 3 2.000  
 551 FOR PU2(OH)3+5 FROM HARWELL R12324  
 PU2OH3+5 300 5.000 8.0 0.0 0.0 0.0 0.  
     -2.0 0.0  
 29 2.000 1 -3.000 3 3.000  
 552 FOR PU2(OH)4+4 FROM HARWELL R12324  
 PU2OH4+4 300 4.000 8.0 0.0 0.0 0.0 0.  
     -3.0 0.0  
 29 2.000 1 -4.000 3 4.000  
 553 FOR PU2(OH)5+3 FROM HARWELL R12324  
 PU2OH5+3 300 3.000 8.0 0.0 0.0 0.0 0.  
     -7.0 0.0  
 29 2.000 1 -5.000 3 5.000  
 554 FOR PUSO4+2 FROM HARWELL R12324  
 PUSO4+2 200 2.000 10.0 0.0 0.0 0.0 0.  
     5.72 0.0  
 29 1.000 16 1.000  
 555 FOR PU(SO4)2 FROM HARWELL R12324

PUS042	200	0.000	16.0	0.0	0.0	0.0	0.
10.25	0.0						
29	1.000	16	2.000				
556 FOR PU(SO4)3-2 FROM HARWELL R12324							
PUS043-2	200	-2.000	22.0	0.0	0.0	0.0	0.
11.5	0.0						
29	1.000	16	3.000				
557 FOR PUCL+3 FROM HARWELL R12324							
PUCL+3	200	3.000	4.0	0.0	0.0	0.0	0.
0.93	0.0						
29	1.000	14	1.000				
558 FOR PUCL2+2 FROM HARWELL R12324							
PUCL2+2	200	2.000	4.0	0.0	0.0	0.0	0.
-0.17	0.0						
29	1.000	14	2.000				
559 FOR PUCL3+ FROM HARWELL R12324							
PUCL3+	200	1.000	4.0	0.0	0.0	0.0	0.
-1.0	0.0						
29	1.000	14	3.000				
560 FOR PU3(OH)5+4 FROM HARWELL R12324							
PU3OH5+4	400	4.000	9.0	0.0	0.0	0.0	0.
17.7	0.0						
29	3.000	1	-5.000	2	3.000	3	5.000
561 FOR PU2(OH)2+4 FROM HARWELL R12324							
PU2OH2+4	400	4.000	6.0	0.0	0.0	0.0	0.
19.8	0.0						
29	2.000	1	-2.000	2	2.000	3	2.000
562 FOR PU(CO3)2- FROM HARWELL R12324							
PU(CO3)2-	300	1.000	7.0	0.0	0.0	0.0	0.
23.4	0.0						
29	1.000	2	1.000	15	1.000		
563 FOR PU(CO3)3-3 FROM HARWELL R12324							
PU(CO3)3-3	300	-1.000	11.0	0.0	0.0	0.0	0.
27.9	0.0						
29	1.000	2	1.000	15	2.000		
564 FOR PU(CO3)3-3 FROM HARWELL R12324							
PU(CO3)3-3	300	-3.000	15.0	0.0	0.0	0.0	0.
31.4	0.0						
29	1.000	2	1.000	15	3.000		
565 FOR PUSO4+ FROM HARWELL R12324							
PUSO4+	300	1.000	9.0	0.0	0.0	0.0	0.
20.4	0.0						
29	1.000	2	1.000	16	1.000		
566 FOR PU(HSO4)2+ FROM HARWELL R12324							
PU(HSO4)2+	400	1.000	15.0	0.0	0.0	0.0	0.
23.8	0.0						
29	1.000	2	1.000	1	2.000	16	2.000
567 FOR PU(HSO4)2+ FROM HARWELL R12324							
PU(HSO4)2+	400	2.000	9.0	0.0	0.0	0.0	0.
17.9	0.0						
29	1.000	2	1.000	1	1.000	16	1.000
568 FOR PU(SO4)2- FROM HARWELL R12324							
PUSO42-	300	-1.000	15.0	0.0	0.0	0.0	0.
22.1	0.0						
29	1.000	2	1.000	16	2.000		
569 FOR PUCL+2 FROM HARWELL R12324							
PUCL+2	300	2.000	3.0	0.0	0.0	0.0	0.
16.8	0.0						
29	1.000	2	1.000	14	1.000		
570 FOR PUCL2+ FROM HARWELL R12324							
PUCL2+	300	1.000	3.0	0.0	0.0	0.0	0.

11.9	0.0						
29	1.000	2	1.000	14	2.000		
571	FOR PU02H2P04+	FROM HARWELL	R12324				
PU02H2P0	500		1.000	6.0	0.0	0.0	0.0
-11.46	0.0						
29	1.000	3	2.000	19	1.000	2 -2.000	1 -2.000
572	FOR PU02HP04-	FROM HARWELL	R12324				
PU02HP04	500		-1.000	5.0	0.0	0.0	0.0
-3.45	0.0						
29	1.000	3	2.000	19	1.000	2 -1.000	1 -3.000
573	FOR PUHP04+2	FROM HARWELL	R12324				
PUHP04+2	300		2.000	4.0	0.0	0.0	0.0
25.28	0.0						
29	1.000	1	1.000	19	1.000		
574	FOR PUH2(P04)2	FROM HARWELL	R12324				
PUH2P042	300		0.000	4.0	0.0	0.0	0.0
48.44	0.0						
29	1.000	1	2.000	19	2.000		
575	FOR PUH3(P04)3-2	FROM HARWELL	R12324				
PUH3P043	300		-2.000	4.0	0.0	0.0	0.0
70.42	0.0						
29	1.000	1	3.000	19	3.000		
576	FOR PUH4(P04)4-4	FROM HARWELL	R12324				
PUH4P044	300		-4.000	4.0	0.0	0.0	0.0
92.53	0.0						
29	1.000	1	4.000	19	4.000		
577	FOR PUH2P04+2	FROM HARWELL	R12324				
PUH2P04+	400		2.000	3.0	0.0	0.0	0.0
38.93	0.0						
29	1.000	1	2.000	19	1.000	2 1.000	
578	FOR PUCO3+2	FROM HARWELL	R12324				
PUCO3 +2	200		2.000	8.0	0.0	0.0	0.0
19.1	0.0						
29	1.000	15	1.000				
579	FOR PU(CO3)2	FROM HARWELL	R12324				
PUCO32	200		0.000	12.0	0.0	0.0	0.0
33.10	0.0						
29	1.000	15	2.000				
580	FOR PU(CO3)3-2	FROM HARWELL	R12324				
PUCO33-2	200		-2.000	16.0	0.0	0.0	0.0
42.30	0.0						
29	1.000	15	3.000				
581	FOR PU(CO3)4-4	FROM HARWELL	R12324				
PUCO34-4	200		-4.000	20.0	0.0	0.0	0.0
45.10	0.0						
29	1.000	15	4.000				
582	FOR PU(CO3)5-6	FROM HARWELL	R12324				
PUCO35-6	200		-6.000	24.0	0.0	0.0	0.0
44.50	0.0						
29	1.000	15	5.000				
583	FOR PUN03+3	FROM HARWELL	R12324				
PUN03+3	200		3.000	9.0	0.0	0.0	0.0
1.80	0.0						
29	1.000	17	1.000				
584	FOR PUN03)2+2	FROM HARWELL	R12324				
PUN032+2	200		2.000	14.0	0.0	0.0	0.0
2.40	0.0						
29	1.000	17	2.000				
585	FOR PUN03)3+	FROM HARWELL	R12324				
PUN033+	200		1.000	19.0	0.0	0.0	0.0
2.30	0.0						

29	1.000	17	3.000					
586	FOR PU02N03+	FROM HARWELL	R12324					
PU02N03+	500	1.000	11.0	0.0	0.0	0.0	0.	
-35.5	0.0							
29	1.000	1	-4.000	2	-2.000	3	2.000	17
587	FOR PUF+3	FROM HARWELL	R12324					
PUF+3	200	3.000	4.0	0.0	0.0	0.0	0.	
8.44	0.0							
29	1.000	20	1.000					
588	FOR PUF2+2	FROM HARWELL	R12324					
PUF2+2	200	2.000	4.0	0.0	0.0	0.0	0.	
15.08	0.0							
29	1.000	20	2.000					
589	FOR PUF3+4	FROM HARWELL	R12324					
PUF3+4	200	1.000	4.0	0.0	0.0	0.0	0.	
19.8	0.0							
29	1.000	20	3.000					
590	FOR PUF4	FROM HARWELL	R12324					
PUF4	200	0.000	4.0	0.0	0.0	0.0	0.	
23.20	0.0							
29	1.000	20	4.000					
591	FOR PU02F+4	FROM HARWELL	R12324					
PU02F+4	500	1.000	6.0	0.0	0.0	0.0	0.	
-30.69	0.0							
29	1.000	3	2.000	2	-2.000	1	-4.000	20
592	FOR AMC03+4	FROM BATTELLE-PNL						
AMC03+4	200	1.000	4.0	0.0	0.0	0.0	0.	
7.60	0.0							
28	1.000	15	1.000					
593	FOR AM(C03)2-5	FROM BATTELLE-PNL						
AMC032-5	200	-1.000	8.0	0.0	0.0	0.0	0.	
12.30	0.0							
28	1.000	15	2.000					
594	FOR AM(C03)3-3	FROM BATTELLE-PNL						
AMC033-3	200	-3.000	12.0	0.0	0.0	0.0	0.	
15.23	0.0							
28	1.000	15	3.000					
602	FOR ZNA	FROM PNC						
ZNA	200	0.000	0.000				0.0	
20.00	0.000							
6	1.000	45	1.000					
603	FOR ZK	FROM PNC						
ZK	200	0.000	0.000					
20.60	0.000							
7	1.000	45	1.000					
604	FOR Z2MG	FROM PNC						
Z2MG	200	0.000	0.000					
40.20	0.000							
5	1.000	45	2.000					
605	FOR Z2CA	FROM PNC						
Z2CA	200	0.000	0.000					
41.80	0.000							
4	1.000	45	2.000					
608	FOR PDOH+	FROM PHILLIPS 1988						
PDOH+	300	1.000	2.0	0.0	0.0	0.0	0.	
-2.12	0.0							
42	1.000	3	1.000	1	-1.000			
609	FOR PD(OH)2(AQ)	FROM PHILLIPS 1988						
PD(OH)2(AQ)	300	0.000	2.0	0.0	0.0	0.0	0.	
-4.62	0.0							
42	1.000	3	2.000	1	-2.000			

610 FOR SNF+ FROM EQ3/6 DATA0.3245R54  
 SNF+ 200 1.000 2.0 0.0 0.0 0.0 0.  
   4.08 0.0  
   34 1.000 20 1.000  
 611 FOR SNF++ FROM EQ3/6 DATA0.3245R54  
 SNF++ 300 3.000 2.0 0.0 0.0 0.0 0.  
   -6.57 0.0  
   34 1.000 20 1.000 2 -2.000  
 612 FOR SNF2 FROM EQ3/6 DATA0.3245R54  
 SNF2 200 0.000 2.0 0.0 0.0 0.0 0.  
   6.68 0.0  
   34 1.000 20 2.000  
 613 FOR SNF2++ FROM EQ3/6 DATA0.3245R54  
 SNF2++ 300 2.000 4.0 0.0 0.0 0.0 0.  
   -4.60 0.0  
   34 1.000 20 2.000 2 -2.000  
 614 FOR SNF3+ FROM EQ3/6 DATA0.3245R54  
 SNF3+ 300 1.000 4.0 0.0 0.0 0.0 0.  
   -6.31 0.0  
   34 1.000 20 3.000 2 -2.000  
 615 FOR SNF3- FROM EQ3/6 DATA0.3245R54  
 SNF3- 200 -1.000 2.0 0.0 0.0 0.0 0.  
   9.46 0.0  
   34 1.000 20 3.000  
 616 FOR SNF4 FROM EQ3/6 DATA0.3245R54  
 SNF4 300 0.000 4.0 0.0 0.0 0.0 0.  
   -4.34 0.0  
   34 1.000 20 4.000 2 -2.000  
 617 FOR SNOH++ FROM EQ3/6 DATA0.3245R54  
 SNOH++ 400 3.000 4.0 0.0 0.0 0.0 0.  
   -4.77 0.0  
   34 1.000 3 1.000 1 -1.000 2 -2.000  
 618 FOR SN(OH)4 FROM EQ3/6 DATA0.3245R54  
 SN(OH)4 400 0.000 4.0 0.0 0.0 0.0 0.  
   -4.53 0.0  
   34 1.000 3 4.000 1 -4.000 2 -2.000  
 619 FOR SN(SO4)2 FROM EQ3/6 DATA0.3245R54  
 SN(SO4)2 300 0.000 4.0 0.0 0.0 0.0 0.  
   -6.14 0.0  
   34 1.000 16 2.000 2 -2.000  
 620 FOR SN(SO4)++ FROM EQ3/6 DATA0.3245R54  
 SN(SO4++) 300 2.000 4.0 0.0 0.0 0.0 0.  
   -19.6 0.0  
   34 1.000 16 1.000 2 -2.000  
 621 FOR ACOH+2 FROM HARWELL R12324  
 ACOH+2 300 2.000 0.0 0.0 0.0 0.0 0.  
   -10.4 0.0  
 49 1.000 3 1.000 1 -1.000  
  
 LOOK MIN  
 U(OH)2SO 4 10.00 -3.17 0.00 0 0.000! NEA !  
   1 -2.000 3 2.000 16 1.000 25 1.000  
 UO2(AM) 3 4.00 0.10 0.00 0 0.000! NEA !  
   1 -4.000 3 2.000 25 1.000  
 CALCITE 2 4.00 -8.48 -2.30 1 0.000!ORIGINAL!  
   15 1.000 4 1.000  
 -0.17191E+03-0.77993E-01 0.28393E+04 0.71595E+02 0.00000E+00  
 ARAGONIT 2 4.00 -8.34 -2.59 1 0.000!ORIGINAL!  
   15 1.000 4 1.000  
 -0.17198E+03-0.77993E-01 0.29033E+04 0.71595E+02 0.00000E+00  
 DOLOMITE 3 8.00 -17.09 -9.44 0 0.000!ORIGINAL!

4	1.000	5	1.000	15	2.000			
SIDERITE	2		6.00	-10.57	-6.14	0		0.000!ORIGINAL!
8	1.000	15		1.000				
STRONTIT	2		4.00	-9.27	-0.40	1		0.000!ORIGINAL!
12	1.000	15		1.000				
0.15503E+03	0.00000E+00	-0.72396E+04	-0.56586E+02	0.00000E+00				
GYPSUM	3		6.00	-4.60	-0.03	1		0.000!ORIGINAL!
4	1.000	16	1.000	3	2.000			
0.82090E+02	0.00000E+00	-0.38539E+04	-0.29812E+02	0.00000E+00				
ANHYDRIT	2		6.00	-4.38	-4.30	0		0.000!ORIGINAL!
4	1.000	16		1.000				
CELESTIT	2		6.00	-6.58	0.23	0		0.000!ORIGINAL!
12	1.000	16		1.000				
BARITE	2		6.00	-9.98	6.14	0		0.000!ORIGINAL!
11	1.000	16		1.000				
HYDROXAP	4		0.00	-3.42	-36.15	0		0.000!ORIGINAL!
3	1.000	95	3.000	4	5.000	1	-4.000	
VIVIANIT	3		6.00	-36.00	0.00	0		0.000!ORIGINAL!
8	3.000	19	2.000	3	8.000			
FLUORITE	2		0.00	-10.96	4.71	0		0.000!ORIGINAL!
4	1.000	20		2.000				
FE OH3A	3		3.00	4.89	0.00	0		0.000!ORIGINAL!
145	1.000	3	3.000	1	-3.000			
GIBBSITE	3		0.00	8.77	-22.80	0		0.000!ORIGINAL!
10	1.000	3	3.000	1	-3.000			
KAOLINIT	4		0.00	-36.92	49.15	0		0.000!ORIGINAL!
3	-7.000	1	2.000	13	2.000	183	2.000	
FES PPT	3		0.00	-3.91	0.00	0		0.000!ORIGINAL!
8	1.000	72	1.000	1	-1.000			
BIRNESIT	4		4.00	18.09	0.00	0		0.000! NEA !
174	1.000	3	2.000	2	-1.000	1	-4.000	
MANGANIT	3		3.00	-0.24	0.00	0		0.000! NEA !
174	1.000	3	2.000	1	-3.000			
SIL GEL	2		0.00	-2.70	5.50	0		0.000! NEA !
13	1.000	3		-2.000				
SIL GLAS	2		0.00	-3.02	4.44	0		0.000! NEA !
13	1.000	3		-1.000				
SEP PPT	4		0.00	-37.21	0.00	0		0.000! NEA !
5	2.000	13	3.000	61	4.000	3	-4.500	
MACKINIT	3		0.00	-4.63	0.00	0		0.000! NEA !
8	1.000	72	1.000	1	-1.000			
MUSCOVIT	4		0.00	14.60	-59.38	0		0.000! NEA !
10	3.000	13	3.000	7	1.000	1	-10.000	
CLINOZOI	5		0.00	43.61	0.00	0		0.000! NEA !
10	3.000	13	3.000	4	2.000	3	1.000	1 -13.
EPIDOTE,	7		3.00	45.43	0.00	0		0.000! NEA !
10	2.000	13	3.000	4	2.000	8	1.000	1 -1.
1	-13.000	2		-1.000				
TREMOLIT	5		0.00	57.70	0.00	0		0.000! NEA !
5	5.000	13	8.000	4	2.000	3	-8.000	1 -14.
ANDRADIT	5		6.00	55.10	0.00	0		0.000! NEA !
13	3.000	4	3.000	8	2.000	1	-12.000	2 -2.
MONTMOCA	5		0.00	41.88	0.00	0		0.000! NEA !
10	14.000	13	22.000	4	1.000	3	-16.000	1 -44.
ANORTHHE	4		0.00	26.70	0.00	0		0.000! NEA !
10	2.000	13	2.000	4	1.000	1	-8.000	
ANORTHTHR	4		0.00	26.37	0.00	0		0.000! NEA !
10	2.000	13	2.000	4	1.000	1	-8.000	
LIME, QU	3		0.00	32.70	-46.37	0		0.000! NEA !
4	1.000	3	1.000	1	-2.000			
ILLITEK3	6		0.00	67.15	0.00	0		0.000! NEA !

5	1.000	10	9.000	13	14.000	7	3.000	3	-8.
1	-32.000								
PHLOGOPI	5		0.00	36.33	0.00	0		0.000!	NEA !
5	3.000	10	1.000	13	3.000	7	1.000	1	-10.
CLINOC26	6		16.00	447.61	0.00	0		0.000!	NEA !
5	26.000	10	20.000	13	24.000	8	8.000	3	48.
1	-128.000								
MG2SI206	4		0.00	23.26	0.00	0		0.000!	NEA !
5	2.000	13	2.000	3	-2.000	1	-4.000		
TALC	4		0.00	20.60	0.00	0		0.000!	NEA !
5	3.000	13	4.000	3	-4.000	1	-6.000		
CLINOC40	5		0.00	546.83	0.00	0		0.000!	NEA !
5	40.000	10	16.000	13	24.000	3	48.000	1	-128.
SEPIOLIT	4		0.00	32.83	0.00	0		0.000!	NEA !
5	4.000	13	6.000	3	-1.000	1	-8.000		
CLINOCH8	7		53.00	178.37	0.00	0		0.000!	NEA !
5	8.000	10	25.000	13	20.000	8	26.000	3	64.
1	-144.000	2	-1.000						
MONTMOMG	5		0.00	57.04	0.00	0		0.000!	NEA !
5	1.000	10	14.000	13	22.000	3	-16.000	1	-44.
MAGNESIO	5		6.00	42.82	-87.02	0		0.000!	NEA !
5	1.000	8	2.000	3	4.000	1	-8.000	2	-2.
PERICLAS	3		0.00	21.58	-36.16	0		0.000!	NEA !
5	1.000	3	1.000	1	-2.000				
MONTMONA	5		0.00	58.54	0.00	0		0.000!	NEA !
6	2.000	10	14.000	13	22.000	3	-16.000	1	-44.
NA2U207C	5		12.00	69.41	-110.02	0		0.000!	NEA !
6	2.000	25	2.000	3	7.000	1	-14.000	2	-4.
NA2U04CA	5		6.00	56.14	-75.61	0		0.000!	NEA !
6	2.000	25	1.000	3	4.000	1	-8.000	2	-2.
PARAGONI	4		0.00	18.87	0.00	0		0.000!	NEA !
6	1.000	10	3.000	13	3.000	1	-10.000		
ALBITE	5		0.00	3.54	0.00	0		0.000!	NEA !
6	1.000	10	1.000	13	3.000	3	-4.000	1	-4.
NATCO4CC	5		7.00	35.54	0.00	0		0.000!	NEA !
6	1.000	24	1.000	3	3.000	1	-6.000	2	-3.
ILLITEK2	5		0.00	28.54	0.00	0		0.000!	NEA !
10	10.000	13	14.000	7	2.000	3	-8.000	1	-32.
MONTMOK	5		0.00	57.51	0.00	0		0.000!	NEA !
10	14.000	13	22.000	7	2.000	3	-16.000	1	-44.
ALUNITE	5		12.00	1.61	-55.31	0		0.000!	NEA !
10	3.000	16	2.000	7	1.000	3	6.000	1	-6.
MICROCLI	5		0.00	1.78	-12.47	0		0.000!	NEA !
10	1.000	13	3.000	7	1.000	3	-4.000	1	-4.
ORTHOCLA	5		0.00	0.86	0.00	0		0.000!	NEA !
10	1.000	13	3.000	7	1.000	3	-4.000	1	-4.
ANNITE	5		6.00	22.33	0.00	0		0.000!	NEA !
10	1.000	13	3.000	7	1.000	8	3.000	1	-10.
HEMATITE	4		6.00	22.40	-51.77	0		0.000!	NEA !
8	2.000	3	3.000	1	-6.000	2	-2.000		
FE2SI206	4		4.00	10.60	0.00	0		0.000!	NEA !
13	2.000	8	2.000	3	-2.000	1	-4.000		
ALMANDIN	4		6.00	33.41	0.00	0		0.000!	NEA !
10	2.000	13	3.000	8	3.000	1	-12.000		
MAGNETIT	4		8.00	30.65	-72.53	0		0.000!	NEA !
8	3.000	3	4.000	1	-8.000	2	-2.000		
PYRRHOTI	5		0.00	-321.28	471.36	0		0.000!	NEA !
16	8.000	8	7.000	3	-32.000	1	64.000	2	62.
LAWRENCI	2		2.00	6.82	-19.96	0		0.000!	NEA !

14	2.000	8	1.000					
MOLYSITE	3	3.00	24.56	-46.92	0		0.000!	NEA !
14	3.000	8	1.000 2	-1.000				
GOETHITE	4	3.00	11.29	-24.71	0		0.000!	NEA !
8	1.000	3	2.000 1	-3.000	2	-1.000		
PYRRHOTI	5	0.00	-39.78	58.33	0		0.000!	NEA !
16	1.000	8	1.000 3	-4.000	1	8.000	2	8.
PYRITE	5	0.00	-85.95	131.16	0		0.000!	NEA !
16	2.000	8	1.000 3	-8.000	1	16.000	2	14.
RHODOCHR	2	6.00	-10.54	-1.59	0		0.000!	NEA !
15	1.000	9	1.000					
PYROLUSI	4	4.00	41.55	-65.12	0		0.000!	NEA !
9	1.000	3	2.000 1	-4.000	2	-2.000		
ALABANDI	5	0.00	-34.11	54.32	0		0.000!	NEA !
16	1.000	9	1.000 3	-4.000	1	8.000	2	8.
TOPAZ, O	4	0.00	12.81	0.00	0		0.000!	NEA !
10	2.000	13	1.000 3	2.000	1	-6.000		
CHALCEDO	2	0.00	-3.49	4.61	0		0.000!	NEA !
13	1.000	3	-2.000					
QUARTZ	2	0.00	-3.78	6.22	0		0.000!	NEA !
13	1.000	3	-2.000					
SILICA H	4	-1.00	-2.47	0.00	0		0.000!	NEA !
13	1.000	3	-2.000 1	1.000	2	1.000		
USIO4(CAM	3	4.00	-2.73	-141.37	0		0.000!	NEA !
13	1.000	25	1.000 1	-4.000				
COFFINIT	3	4.00	-7.67	0.00	0		0.000!	NEA !
13	1.000	25	1.000 1	-4.000				
(UO2)2CO	5	14.00	-19.82	-43.13	0		0.000!	NEA !
15	1.000	25	2.000 3	4.000	1	-8.000	2	-2.
U(CO3)2(	2	12.00	-13.21	-33.78	0		0.000!	NEA !
15	2.000	25	1.000					
UC2(C)	5	0.00	13.15	-33.78	0		0.000!	NEA !
15	2.000	25	1.000 3	-6.000	1	12.000	2	12.
RUTHERFO	5	10.00	-5.46	0.00	0		0.000!	NEA !
15	1.000	25	1.000 3	2.000	1	-4.000	2	-2.
U(SO3)2(	5	12.00	-28.88	10.71	0		0.000!	NEA !
16	2.000	25	1.000 3	-2.000	1	4.000	2	4.
U(SO4)2(	2	16.00	-11.72	-23.98	0		0.000!	NEA !
16	2.000	25	1.000					
UO2SO3(C	4	10.00	-2.97	-29.98	0		0.000!	NEA !
16	1.000	25	1.000 3	1.000	1	-2.000		
UO2SO4(C	5	12.00	10.88	-54.29	0		0.000!	NEA !
16	1.000	25	1.000 3	2.000	1	-4.000	2	-2.
UO2SO4.2	5	11.00	-13.37	-8.69	0		0.000!	NEA !
16	1.000	25	1.000 3	4.000	1	-3.000	2	-1.
UO2SO4.3	5	11.00	-13.37	-6.72	0		0.000!	NEA !
16	1.000	25	1.000 3	5.000	1	-3.000	2	-1.
UO2SO4.3	5	12.00	7.49	-41.70	0		0.000!	NEA !
16	1.000	25	1.000 3	5.000	1	-4.000	2	-2.
(UO2)2CL	5	11.00	29.20	-101.02	0		0.000!	NEA !
14	3.000	25	2.000 3	4.000	1	-8.000	2	-3.
COBALTOU	2	2.00	8.79	-19.34	0		0.000!	NEA !
14	2.000	27	1.000					
U202CL5(C	5	9.00	26.68	-93.75	0		0.000!	NEA !
14	5.000	25	2.000 3	2.000	1	-4.000	2	-1.
U5012CL(C	5	25.00	18.74	-167.06	0		0.000!	NEA !
14	1.000	25	5.000 3	12.000	1	-24.000	2	-5.
UCL3(C)	3	3.00	21.81	-54.12	0		0.000!	NEA !
14	3.000	25	1.000 2	1.000				
UCL4(C)	2	4.00	21.88	-57.56	0		0.000!	NEA !
14	4.000	25	1.000					

UCL5(C)	3	5.00	41.34	-88.00	0	0.000! NEA !
	14	5.000	25	1.000 2	-1.000	
UCL6(C)	3	6.00	62.05	-119.96	0	0.000! NEA !
	14	6.000	25	1.000 2	-2.000	
U02CL(C)	5	5.00	7.15	-38.24	0	0.000! NEA !
	14	1.000	25	1.000 3	2.000	1 -4.000 2 -1.
U02CL2(C)	5	6.00	21.11	-60.60	0	0.000! NEA !
	14	2.000	25	1.000 3	2.000	1 -4.000 2 -2.
U02CL2.3	5	6.00	14.56	-45.36	0	0.000! NEA !
	14	2.000	25	1.000 3	5.000	1 -4.000 2 -2.
U02CL2.H	5	6.00	17.25	-53.34	0	0.000! NEA !
	14	2.000	25	1.000 3	3.000	1 -4.000 2 -2.
U02CL0H.	5	6.00	17.59	-42.33	0	0.000! NEA !
	14	1.000	25	1.000 3	5.000	1 -5.000 2 -2.
UOCL(C)	5	3.00	19.85	-50.50	0	0.000! NEA !
	14	1.000	25	1.000 3	1.000	1 -2.000 2 1.
UOCL2(C)	4	4.00	5.80	-34.50	0	0.000! NEA !
	14	2.000	25	1.000 3	1.000	1 -2.000 .
UOCL3(C)	5	5.00	16.04	-51.48	0	0.000! NEA !
	14	3.000	25	1.000 3	1.000	1 -2.000 2 -1.
U307(BET)	4	14.00	1.19	-83.24	0	0.000! NEA !
	25	3.000	3	7.000 1	-14.000	2 -2.000
U308(C)	4	16.00	20.40	-116.08	0	0.000! NEA !
	25	3.000	3	8.000 1	-16.000	2 -4.000
U409(BET)	4	18.00	8.70	-101.40	0	0.000! NEA !
	25	4.000	3	9.000 1	-18.000	2 -2.000
U02(OH)2	4	6.00	13.92	-48.00	0	0.000! NEA !
	25	1.000	3	4.000 1	-6.000	2 -2.000
U02(P03)	3	6.00	-29.20	-44.00	0	0.000! NEA !
	19	2.000	25	1.000 2	-2.000	
URANINIT	3	4.00	-4.90	-18.62	0	0.000! NEA !
	25	1.000	3	2.000 1	-4.000	
U03(ALPH)	4	6.00	17.63	-55.28	0	0.000! NEA !
	25	1.000	3	3.000 1	-6.000	2 -2.000
U03(BETA)	4	6.00	17.30	-54.61	0	0.000! NEA !
	25	1.000	3	3.000 1	-6.000	2 -2.000
U03(GAMM)	4	6.00	16.69	-53.78	0	0.000! NEA !
	25	1.000	3	3.000 1	-6.000	2 -2.000
U03.0.9H	4	5.00	-23.40	13.78	0	0.000! NEA !
	25	1.000	3	3.000 1	-5.000	2 -1.000
SCHOEPIT	4	6.00	13.81	-46.45	0	0.000! NEA !
	25	1.000	3	5.000 1	-6.000	2 -2.000
COBALTOU	3	2.00	13.44	-24.76	0	0.000! NEA !
	27	1.000	3	1.000 1	-2.000	
PERTECHN	4	7.00	38.97	-105.10	0	0.000! NEA !
	24	1.000	3	3.000 1	-5.000	2 -3.000
TC(OH)3(C)	4	3.00	-14.63	0.00	0	0.000! NEA !
	24	1.000	3	2.000 1	-1.000	2 1.000
TC207(C)	3	14.00	13.11	-210.62	0	0.000! NEA !
	315	2.000	3	-1.000 1	2.000	
TC304(S)	4	8.00	-56.89	0.00	0	0.000! NEA !
	24	3.000	3	1.000 1	-2.000	2 4.000
TC407(S)	4	14.00	-36.79	0.00	0	0.000! NEA !
	24	4.000	3	3.000 1	-6.000	2 2.000
TC02.2H2	3	4.00	-4.23	0.00	0	0.000! NEA !
	24	1.000	3	3.000 1	-2.000	
TC03(C)	4	6.00	19.96	-75.92	0	0.000! NEA !

24	1.000	3	2.000	1	-4.000	2	-2.000	
U2F9(C)	3		9.00	-38.38	-44.20	0		0.000! NEA !
20	9.000	25	2.000	2	-1.000			
U203F6(CC)	5		12.00	13.42	-112.77	0		0.000! NEA !
20	6.000	25	2.000	3	3.000	1	-6.000	2 -4.
U305F8(C)	5		18.00	22.73	-164.06	0		0.000! NEA !
20	8.000	25	3.000	3	5.000	1	-10.000	2 -6.
U4F17(C)	3		17.00	-99.98	-49.04	0		0.000! NEA !
20	17.000	25	4.000	2	-1.000			
UCL2F2(C)	3		4.00	-3.66	-31.10	0		0.000! NEA !
20	2.000	14	2.000	25	1.000			
UCL3F(C)	3		4.00	10.20	-44.19	0		0.000! NEA !
20	1.000	14	3.000	25	1.000			
UCLF3(C)	3		4.00	-17.69	-17.77	0		0.000! NEA !
20	3.000	14	1.000	25	1.000			
UF3(C)	3		3.00	-10.35	-22.75	0		0.000! NEA !
20	3.000	25	1.000	2	1.000			
UF4(C)	2		4.00	-29.41	-4.40	0		0.000! NEA !
20	4.000	25	1.000					
UF4.2.5H	5		3.00	-52.21	39.99	0		0.000! NEA !
20	4.000	25	1.000	3	2.000	1	1.000	2 1.
UF5(ALPH)	3		5.00	-5.51	-46.07	0		0.000! NEA !
20	5.000	25	1.000	2	-1.000			
UF5(BETA)	3		5.00	-5.85	-44.18	0		0.000! NEA !
20	5.000	25	1.000	2	-1.000			
UF6(C)	3		6.00	26.32	-97.15	0		0.000! NEA !
20	6.000	25	1.000	2	-2.000			
UO2F2(C)	5		6.00	1.68	-43.06	0		0.000! NEA !
20	2.000	25	1.000	3	2.000	1	-4.000	2 -2.
UO2F2.3H	5		6.00	2.38	-37.46	0		0.000! NEA !
20	2.000	25	1.000	3	5.000	1	-4.000	2 -2.
UO2FOH(CC)	5		6.00	7.10	-44.37	0		0.000! NEA !
20	1.000	25	1.000	3	3.000	1	-5.000	2 -2.
UO2FOH.2	5		6.00	6.28	-39.54	0		0.000! NEA !
20	1.000	25	1.000	3	5.000	1	-5.000	2 -2.
UO2FOH.H	5		6.00	6.66	-41.93	0		0.000! NEA !
20	1.000	25	1.000	3	4.000	1	-5.000	2 -2.
UOF2(C)	4		4.00	-18.28	-10.31	0		0.000! NEA !
20	2.000	25	1.000	3	1.000	1	-2.000	
UOF2.H2O	4		4.00	-18.84	-7.55	0		0.000! NEA !
20	2.000	25	1.000	3	2.000	1	-2.000	
UOF4(C)	5		6.00	13.42	-70.26	0		0.000! NEA !
20	4.000	25	1.000	3	1.000	1	-2.000	2 -2.
UOFOH(C)	4		4.00	-14.56	-17.10	0		0.000! NEA !
20	1.000	25	1.000	3	2.000	1	-3.000	
UOFOH.O.	5		3.00	-35.74	18.63	0		0.000! NEA !
20	1.000	25	1.000	3	2.000	1	-2.000	2 1.
PU02	3		4.00	-7.00	-12.48	0		0.000!HARWELL!
29	1.000	3	2.000	1	-4.000			
PU020H2	3		6.00	3.00	0.00	0		0.000!HARWELL!
270	1.000	3	2.000	1	-2.000			
PU(OH)4	3		4.00	0.40	0.00	0		0.000!HARWELL!
29	1.000	3	4.000	1	-4.000			
PU020H	3		5.00	5.00	0.00	0		0.000!HARWELL!
269	1.000	1	-1.000	3	1.000			
PU203	3		3.00	48.00	0.00	0		0.000!HARWELL!
268	2.000	1	-6.000	3	3.000			
PU(OH)3	3		3.00	22.00	0.000	0		0.000!HARWELL!
268	1.000	1	-3.000	3	3.000			
AM(OH)3	3		0.00	17.50	0.000	0		0.000!BATTELLE!
28	1.000	3	3.000	1	-3.000			

CO2 GAS	2		4.00	-1.47	-4.78	1		-3.50!ORIGINAL!
65	1.000	3	-1.000					
0.10839E+03	0.19851E-01-0.69195E+04-0.40452E+02	0.66937E+06						
O2 GAS	1		4.00	-2.96	-1.84	0		0.000!ORIGINAL!
62	1.000							
H2 GAS	1		-2.00	-3.15	-1.76	0		0.000!ORIGINAL!
63	1.000							
N2 GAS	1		0.00	-3.26	-1.36	0		0.000! NEA !
79	1.000							
H2S GAS	1		-2.00	-1.00	-4.57	0		0.000! NEA !
236	1.000							
CH4 GAS	1		-4.00	-2.86	-3.37	0		0.000! NEA !
66	1.000							
NH3 GAS	1		-3.00	1.77	-8.17	0		0.000! NEA !
80	1.000							
FERROSIL	4		2.00	7.42	0.000	0		0.000
8	1.000	13	1.000	3	-1.000	1	-2.000	
GREENALI	4		6.00	22.59	0.000	0		0.000
8	3.000	13	2.000	3	1.000	1	-6.000	
FAYALITE	3		4.00	19.05	0.000	0		0.000
8	2.000	13	1.000	1	-4.000			
ND(OH)3	3		3.00	18.6	0.000	0		0.000
44	1.000	3	3.000	1	-3.000			
NI(OH)2	3		0.00	10.8	0.000	0		0.000!HARWELL
31	1.000	3	2.000	1	-2.000			
NIC03	2		4.00	-6.87	0.000	0		0.000!HARWELL
31	1.000	15	1.000					
SE	4		0.00	-88.92	0.000	0		0.000!HARWELL
32	1.000	3	-4.000	2	6.000	1	8.000	
SE02	4		4.00	-35.82	0.000	0		0.000!HARWELL
32	1.000	3	-2.000	2	2.000	1	4.000	
SE03	3		6.00	19.2	0.000	0		0.000!HARWELL
32	1.000	3	-1.000	1	2.000			
SE205	4		10.00	-19.6	0.000	0		0.000!HARWELL
32	2.000	3	-3.000	2	2.000	1	6.000	
FESE2	5		0.00	-181.10	0.00	0		0.000!HARWELL
32	2.000	8	1.000	3	-8.000	1	16.000	2 14.
SR3P042	2		0.00	-27.8	0.000	0		0.000!HARWELL
12	3.000	19	2.000					
SRHP04	3		0.00	-19.31	0.000	0		0.000!HARWELL
12	1.000	19	1.000	1	1.000			
SRN032	2		10.00	0.59	0.000	0		0.000!HARWELL
12	1.000	17	2.000					
SROH2	3		0.00	24.98	0.000	0		0.000!HARWELL
12	1.000	3	2.000	1	-2.000			
SRS04	2		6.00	-6.42	0.000	0		0.000!HARWELL
12	1.000	16	1.000					
SRC03	2		4.00	-9.25	0.000	0		0.000!HARWELL
12	1.000	15	1.000					
ZR(OH)4	3		0.00	-1.90	0.000	0		0.000!HARWELL
33	1.000	3	4.000	1	-4.000			
SNO	3		2.00	1.41	0.000	0		0.000! EQ3/6 !
34	1.000	3	1.000	1	-2.000			
SNO2	4		4.00	-3.06	0.000	0		0.000! EQ3/6 !
34	1.000	3	2.000	2	-2.000	1	-4.000	
SN(OH)2	3		2.00	1.84	0.000	0		0.000! EQ3/6 !
34	1.000	3	2.000	1	-2.000			
I2	2		0.00	18.18	-27.200	0		0.000!HARWELL
23	2.000	2	-2.000					
CSN03	2		5.00	-0.41	9.760	0		0.000!HARWELL
30	1.000	17	1.000					

SM(OH)3	3	0.00	16.50	0.000	0	0.000!HARWELL
35	1.000	3	3.000	1	-3.000	
SM2S043	2	18.00	-8.33	0.000	0	0.000!HARWELL
35	2.000	16	3.000			
SM2C033	2	12.00	-26.75	0.000	0	0.000!HARWELL
35	2.000	15	3.000			
PB	2	0.00	4.19	0.220	0	0.000!HARWELL
36	1.000	2	2.000			
PBO	3	2.00	12.72	0.000	0	0.000!HARWELL
36	1.000	3	1.000	1	-2.000	
PB(OH)2	3	2.00	11.90	0.000	0	0.000!HARWELL
36	1.000	3	2.000	1	-2.000	
PB304	4	8.00	73.50	-100.000	0	0.000!HARWELL
36	3.000	3	4.000	1	-8.000	2
PBS04	2	8.00	-7.80	2.700	0	-2.000
36	1.000	16	1.000			0.000!HARWELL
PBC03	2	6.00	-12.90	5.500	0	0.000!HARWELL
36	1.000	15	1.000			
PBS	5	0.00	-49.10	80.000	0	0.000!HARWELL
36	1.000	16	1.000	1	8.000	2
RAS04	2	6.00	-10.40	0.000	0	8.000 3 4. 0.000!HARWELL
37	1.000	16	1.000			
RAC03	2	4.00	-7.00	0.000	0	0.000!HARWELL
37	1.000	15	1.000			
TH(OH)4	3	0.00	12.60	0.000	0	0.000!HARWELL
38	1.000	3	4.000	1	-4.000	
TH02	3	0.00	6.30	0.000	0	0.000!HARWELL
38	1.000	3	2.000	1	-4.000	
TH(SO4)2	2	12.00	-20.35	0.000	0	0.000!HARWELL
38	1.000	16	2.000			
THF4	2	0.00	-30.17	0.000	0	0.000!HARWELL
38	1.000	20	4.000			
THHP042	3	0.00	-51.56	0.000	0	0.000!HARWELL
38	1.000	19	2.000	1	2.000	
PA02	3	4.00	0.60	0.000	0	0.000!HARWELL
39	1.000	3	2.000	1	-4.000	
PA205	4	10.00	-19.58	0.000	0	0.000!HARWELL
39	2.000	3	5.000	2	-2.000	1 -10.000
PACL4	2	4.00	24.10	-58.530	0	0.000!HARWELL
39	1.000	14	4.000			
NP(OH)3	3	3.00	21.99	0.000	0	0.000!HARWELL
486	1.000	3	3.000	1	-3.000	
NP02	3	4.00	-2.68	0.000	0	0.000!HARWELL
40	1.000	1	-4.000	3	2.000	
NP(OH)4	3	4.00	0.74	0.000	0	0.000!HARWELL
40	1.000	1	-4.000	3	4.000	
NP020H	3	5.00	4.70	0.000	0	0.000!HARWELL
484	1.000	3	1.000	1	-1.000	
NP020H2	3	6.00	5.30	0.000	0	0.000!HARWELL
485	1.000	3	2.000	1	-2.000	
AMOHCO3	4	4.00	-8.50	0.000	0	0.000!BATTELLI
28	1.000	3	1.000	1	-1.000	15 1.000
PU02C03	2	10.00	-13.80	0.000	0	0.000!HARWELL!
270	1.000	15	1.000			
PUKS043	3	28.00	-18.00	0.000	0	0.000!HARWELL!
29	1.000	7	4.000	16	4.000	
PUCL3	2	3.00	-11.4	0.000	0	0.000!HARWELL!
268	1.000	14	3.000			
PU02HP04	5	6.00	10.07	0.000	0	0.000!HARWELL!
29	1.000	1	-3.000	2	-2.000	3 2.000 19 1.
PUHP042	3	4.00	-52.33	0.000	0	0.000!HARWELL!

29	1.000	1	2.000	19	2.000			
PUF4	2		4.00	-30.17	0.000	0		0.000!HARWELL
29	1.000	20		4.000				
PUOH2C03	4		8.00	-22.10	0.000	0		0.000!HARWELL
29	1.000	3	2.000	1	-2.000	15	1.000	0.000!HARWELL
U02C03	2		10.00	-14.40	0.000	0		0.000!HARWELL
297	1.000	15		1.000				0.000!HARWELL
U020H	3		5.00	5.00	0.000	0		0.000!HARWELL
296	1.000	3		1.000	1	-1.000		0.000!HARWELL
NAU03	4		5.00	9.75	0.000	0		0.000!HARWELL
296	1.000	3		1.000	1	-2.000	6	1.000
NA2U04	4		6.00	31.56	0.000	0		0.000!HARWELL
297	1.000	3		2.000	1	-4.000	6	2.000
NA3U04	4		5.00	57.90	0.000	0		0.000!HARWELL
296	1.000	3		2.000	1	-4.000	6	3.000
NA2U207	4		12.00	24.52	0.000	0		0.000!HARWELL
297	2.000	3		3.000	1	-6.000	6	2.000
CAU04	4		6.00	15.00	0.000	0		0.000!HARWELL
297	1.000	3		2.000	1	-4.000	4	1.000
MGU04	4		6.00	23.20	0.000	0		0.000!HARWELL
297	1.000	3		2.000	1	-4.000	5	1.000
UO23P042	5		6.00	-21.67	0.000	0		0.000!HARWELL
25	3.000	1		-12.000	2	-6.000	3	6.000 19 2.
H2U02P04	5		6.00	-29.92	0.000	0		0.000!HARWELL
25	2.000	1		-6.000	2	-4.000	3	4.000 19 2.
UO2HP04	5		6.00	-15.39	0.000	0		0.000!HARWELL
25	1.000	1		-3.000	2	-2.000	3	2.000 19 1.
UHP042	4		4.00	-51.47	0.000	0		0.000!HARWELL
25	1.000	3		4.000	1	2.000	19	2.000
CAUP04	4		4.00	-54.14	0.000	0		0.000!HARWELL
25	1.000	4		1.000	3	2.000	19	2.000
K-FELDSP	5		0.00	0.0832	0.00	0		! EQ3/6
13	3.000	3		-4.000	1	-4.000	7	1.000 10 1.0
NBO	4		2.00	13.89	0.00	0		!NBS-82!
41	1.000	3		-2.000	2	3.000	1	4.000
NB02	4		4.00	-7.97	0.00	0		!NBS-82!
41	1.000	3		-1.000	2	1.000	1	2.000
NB205	3		10.00	-24.34	0.00	0		!NBS-82!
41	2.000	3		-1.000	1	2.000		
PDO	3		2.00	-4.25	0.00	0		!PHI-88!
42	1.000	3		1.000	1	-2.000		
PDO2	4		4.00	34.65	0.00	0		!PHI-88!
42	1.000	3		2.000	2	-2.000	1	-4.000
PD(OH)2	3		2.00	-0.81	0.00	0		!PHI-88!
42	1.000	3		2.000	1	-2.000		
SB204	2		8.00	-20.20	0.00	0		!NBS-82!
46	2.000	2		-2.000				
SB205	4		10.00	15.47	0.00	0		!NBS-82!
46	2.000	3		1.000	2	-4.000	1	-2.000
SB406	3		12.00	-66.85	0.00	0		!NBS-82!
46	4.000	3		-2.000	1	4.000		
SB(OH)3	3		3.00	-18.91	0.00	0		!NBS-82!
46	1.000	3		1.000	1	1.000		
BI203	3		0.00	9.11	0.00	0		!NBS-82!
47	2.000	3		3.000	1	-6.000		
PO(OH)4	3		4.00	19.52	0.00	0		!NBS-82!
48	1.000	3		4.000	1	-4.000		
AC(OH)3	3		0.00	21.10	0.00	0		!HARWELL!
49	1.000	3		3.000	1	-3.000		
CS20	3		0.00	89.89	0.00	0		!PHI-88!
30	2.000	3		1.000	1	-2.000		

CSOH	3		0.00	27.42	0.00	0		!PHI-88!
30	1.000	3	1.000	1	-1.000			
CS2S04	2		6.00	0.87	0.00	0		!PHI-88!
30	2.000	16	1.000					
CS2C03	2		4.00	10.07	0.00	0		!PHI-88!
30	2.000	15	1.000					
CM02	4		4.00	37.83	0.00	0		!PHI-88!
50	1.000	3	2.000	2	-1.000	1	-4.000	
CM203	3		6.00	53.98	0.00	0		!PHI-88!
50	2.000	3	3.000	1	-6.000			
CM(OH)3	3		3.00	24.78	0.00	0		!PHI-88!
50	1.000	3	3.000	1	-3.000			
TC(OH)2	3		2.00	-21.63	0.00	0		0.000!PHI-88!
24	1.000	3	1.000	2	2.000			
TCO2(C)	3		4.00	-19.76	0.00	0		0.000!PHI-88!
24	1.000	3	1.000	1	-2.000			
TC(CR)	4		0.00	-23.94	0.00	0		0.000!PHI-88!
24	1.000	3	-1.000	1	2.000	2	4.000	
PD(CR)	2		0.00	-30.94	0.00	0		0.000!PHI-88!
42	1.000	2	2.000					
SILI(AM)	2		0.00	-2.71	6.22	0		
13	1.000	3	-2.000					0.000! EQ3/6 !

END

出 典

ORIGINAL

Parkhurst, D.L., Thorstenson, D.C. and Plummer, L.N. (1980): PHREEQE - A Computer Program for Geochemical Calculations, U.S. Geological Survey, Water-Resources Investigations 80-96.

NEA

For Example,

Muller, A.B. (1985): NEA Compilation of Chemical Thermodynamic Data for Minerals Associated with Granite, OECD/NEA.

Grenthe, I., Fuger, J., Lemire, R.J., Muller, A.B., Nguyen-Trung, C. and Wanner, H. (1990): NEA-TDB Chemical Thermodynamics of Uranium, Final Draft for Peer Review, OECD/NEA

BATTELLE

Rai, D., Strickert, R.G., Moore, D.A. and Ryan, J.L. (1983): Am(III) Hydrolysis Constants and Solubility of Am(III) Hydroxide, Radiochimica Acta 33, pp. 201-206.

Felmy, A.R., Rai, D. and Fulton, R.W. (1990): The Solubility of  $\text{AmOHCO}_3(\text{c})$  and the Aqueous Thermodynamics of the System  $\text{Na}^+ - \text{Am}^{3+} - \text{HCO}_3^- - \text{CO}_3^{2-} - \text{OH}^- - \text{H}_2\text{O}$ , Radiochimica Acta 50, pp. 193-204.

HARWELL

Cross, J.E., Ewart, F.T. and Tweed, C.J. (1987): Thermochemical Modelling with Application to Nuclear Waste Processing and Disposal, AERE-R 12324.

EQ3/6

EQ3/6 DATA0 3245R54

PHI-88

Phillips, S.L., Hale, F.V., Sylvester, L.F. and Siegel, M.D. (1988): Thermodynamic Tables for Nuclear Waste Isolation Aqueous Solutions Database, NUREG/CR-4864, LBL-22860, SAND87-0323

NBS-82

Wagman, D.D., Evans, W.H., Parker, V.B., Schumm, R.H., Halow, I., Bailey, S.M., Churney, K.L. and Nuttall, R.L. (1982): The NBS Tables of Chemical Thermodynamic Properties Selected Values for Inorganic and C<sub>1</sub> and C<sub>2</sub> Organic Substances in SI Units, Journal of Physical and Chemical Reference Data, Vol. 11, No. 2.

## 付録2 地下水組成の感度解析

### 1. 目的

本文4.1および4.2に基づき、降水系高pH型、降水系低pH型、海水系高pH型、海水系低pH型の各地下水モデルにおける鉱物の組み合わせについてまとめ、この組み合わせに従って感度解析を行い、各地下水組成の幅を把握することを目的とする。

### 2. 感度解析で留意した点

- (1) 堆積岩で一般に見られる鉱物として、スメクタイト、イライト、黒雲母、緑泥石等を考慮するとともに、花崗岩の母岩鉱物、亀裂内の鉱物も考慮する。また、モデリングで対象とすべき元素濃度は、代表的なものに限定する。すなわち、モデリングで対象とすべき元素濃度を、Na, Ca, Si, Fe, K,  $\text{HCO}_3^-$ ,  $\text{SO}_4^{2-}$ に限定し、かつスメクタイト、イライト、黒雲母、緑泥石等の粘土鉱物（ただし端成分鉱物）も考慮することとした。
- (2) モデリングで考慮すべき溶解反応、風化反応の設定  
本報告書の表3.1.1～表3.1.4及び表3.1.7を参照した。
- (3) 一般的に日本の堆積岩、花崗岩で見られる鉱物  
(1)の鉱物としては、本報告書で記載されている鉱物種を参考とした（本文表4.2.1～表4.2.4）。

以上の観点から、感度解析で考慮すべきパラメータの設定を行った。

### 3. 地球化学反応の組み合わせ

地下水組成のパラメータであるpH, Eh, イオン濃度を支配する反応として、以下の反応の組み合わせを考える。

- Eh及びイオン濃度 ;
    - ・ 黄鉄鉱と水溶液間の酸化還元平衡 → Fe濃度,  $\text{SO}_4^{2-}$ 濃度, Eh支配
    - ・ 鉄酸化鉱物（磁鉄鉱）と水溶液間の酸化還元平衡 → Fe濃度, Eh支配
    - ・ 菱鉄鉱と水溶液間の酸化還元平衡 → Fe濃度, Eh支配
    - ・ 有機物CH<sub>2</sub>Oによる酸化性化学種(O<sub>2</sub>(aq) 等) の還元反応  
→ pH支配, Eh支配 (注 1)
    - ・ 有機物CH<sub>2</sub>Oによる $\text{SO}_4^{2-}$ の還元反応 →  $\text{SO}_4^{2-}$ 濃度, Eh支配, pH支配 (注 1)
  - pH及びイオン濃度 ;
    - ・ 石英と水溶液間の溶解平衡 → Si濃度, pH支配
    - ・ 方解石と水溶液間の溶解平衡 → Ca濃度,  $\text{HCO}_3^-$ 濃度, pH支配
    - ・ ドロマイトと水溶液間の溶解平衡 → Ca濃度, Mg濃度, pH支配
    - ・ 方解石とドロマイト間の化学平衡 → Ca濃度, Mg濃度
    - ・ アルバイトとカオリナイト間の化学平衡 → Na濃度, pH支配
    - ・ アルバイトとスメクタイト間の化学平衡 → Na濃度, pH支配
    - ・ スメクタイトと水溶液間の溶解平衡 → Na濃度
    - ・ アルバイトと水溶液間の溶解平衡 → Na濃度
    - ・ カリ長石とイライト間の化学平衡 → K濃度, pH支配
    - ・ 黒雲母とカオリナイト間の化学平衡 → K濃度, pH支配
    - ・ イライトと水溶液間の溶解平衡 → K濃度
    - ・ カリ長石と水溶液間の溶解平衡 → K濃度
    - ・ 黒雲母と水溶液間の溶解平衡 → K濃度
    - ・  $\text{CO}_2(\text{gas})$ の水溶液による吸収 →  $\text{HCO}_3^-$ 濃度 (注 2)
    - ・ ブランクケース 該当する溶解平衡を考慮しない場合

ここでは、4種類の地下水について以上の反応を組み合わせた感度解析を実施した。その解析条件を付表2-1～付表2-4に示す。

なお、スメクタイトはNa-モンモリロナイト、イライトは白雲母、黒雲母は金雲母、アンナイトの端成分鉱物を考えた。

#### 4. 感度解析結果

降水系地下水（降水系高pH型、降水系低pH型）の結果を付図2-1に示す。本図より、pHの範囲は5～10となり本報告書で設定したモデル地下水が概ね適切であることが判った。また、海水系地下水（海水系高pH型、海水系低pH型）の結果を付図2-2に示す。本図よりpHの範囲は5～8となり本報告書で設定した高pH型のモデル地下水については概ね適切であることが判った。低pH型の地下水については本報告書で設定したモデル地下水と比べ若干の差がある。

#### 5. 今後の課題

本報告書では、これらの感度解析に基づき、現実的な深部地下水組成のデータを考慮しつつ4種類の還元性のモデル地下水を設定した。今後は更に深部地下水組成データの実測及び収集を行うと同時に、地下水変遷モデルを確立することにより地下水組成の幅を明確にしてゆく必要がある。

---

(注1 有機炭素量として3種類程度パラメーターとする。

(注2 炭酸ガス分圧として2種類程度パラメーターとする。

付表 2-1 降水系高pH型地下水感度解析ケース

## 降 水

	組合せ数
$P_{CO_2} = 10^{-3.5}$ (二酸化炭素分圧)	1
$P_{O_2} = 10^{-0.7}$ (酸素分圧)	

## 土壌中

$P_{CO_2} = 10^{-1.0}$ , $P_{CO_2} = 10^{-3.0}$	2
---	---

岩体中（各元素濃度や地下水特性を評価するために仮定した平衡鉱物または反応）

Si ; 石英	1
Ca ; 方解石	1
Na ; アルバイトーカオリナイト	3
アルバイトースメクタイト (Na-モンモリロナイト)	
スメクタイト (Na-モンモリロナイト)	
K ; カリ長石-イライト (白雲母)	4
黒雲母 (金雲母) - カオリナイト	
黒雲母 (アンナイト) - カオリナイト	
イライト (白雲母)	
Eh ; 黄鉄鉱	6
菱鉄鉱	
磁鉄鉱	
菱鉄鉱／磁鉄鉱	
菱鉄鉱／赤鉄鉱	
磁鉄鉱／赤鉄鉱	
有機炭素 (1.2 E-2, 1.2 E-1, 1.2 mol/l)	

total 216ケース

付表2—2 降水系低pH型地下水感度解析ケース

降水	組合せ数
$P_{CO_2} = 10^{-3.5}$	(1)
$P_{O_2} = 10^{-0.7}$	
↓	
土壤中	
$P_{CO_2} = 10^{-1.0}, P_{CO_2} = 10^{-3.0}$	(2)
↓	
岩体中	
・強風化帯	3
降水系高pH型の結果より	
両極端なケースをピックアップする。	

↓

- ・弱風化帯 (各元素濃度や地下水特性を評価するために仮定した平衡鉱物または反応)

Si ; 石英	1
Ca ; 方解石	1
Na ; アルバイト	1
K ; カリ長石	3
黒雲母 (金雲母)	
黒雲母 (アンナイト)	
Eh ; 黄鉄鉱	3
菱鉄鉱	
磁鉄鉱	

↓

- ・未風化帯 (各元素濃度や地下水特性を評価するために仮定した平衡鉱物または反応)

Si ; 石英	1
Na ; アルバイト	1
K ; カリ長石	3
黒雲母 (金雲母)	
黒雲母 (アンナイト)	
Eh ; 磁鉄鉱	5
黄鉄鉱	
有機炭素 (1.2 E - 2, 1.2 E - 1, 1.2 mol/l)	

total 405ケース

付表 2-3 海水系高pH型地下水感度解析ケース

海 水



組合せ数

岩体中（各元素濃度や地下水特性を評価するために仮定した平衡鉱物または反応）

 $\text{SO}_4^{2-}/\text{HS}^-$  ; 有機炭素による $\text{SO}_4^{2-}$ の還元（有機炭素量 3種類）

5.5 E-2, 1.1 E-2, 5.5 mol/l ..... 3

Si ; 石英 ..... 1

Ca ; 方解石, ドロマイト ..... 3

方解石／ドロマイト

Na ; アルバイト-カオリナイト ..... 5

アルバイト-スメクタイト (Na-モンモリロナイト)

スメクタイト (Na-モンモリロナイト)

ブランク

K ; カリ長石-イライト (白雲母) ..... 4

黒雲母 (金雲母)-カオリナイト

黒雲母 (アンナイト)-カオリナイト

イライト (白雲母)

total 180ケース

付表 2—4 海水系低pH型地下水感度解析ケース

海 水



組合せ数

岩体中（各元素濃度や地下水特性を評価するために仮定した平衡鉱物または反応）

 $\text{SO}_4^{2-}/\text{HS}^-$  ; 有機炭素による $\text{SO}_4^{2-}$ の還元（有機炭素量 3種類）

5.5 E-2, 1.1 E-2, 5.5 mol/l ..... 3

Si ; 石英 ..... 1

Ca ; 方解石, ドロマイト ..... 3

方解石／ドロマイト

Na ; アルバイト ..... 5

スメクタイト (Na-モンモリロナイト)

ブランク

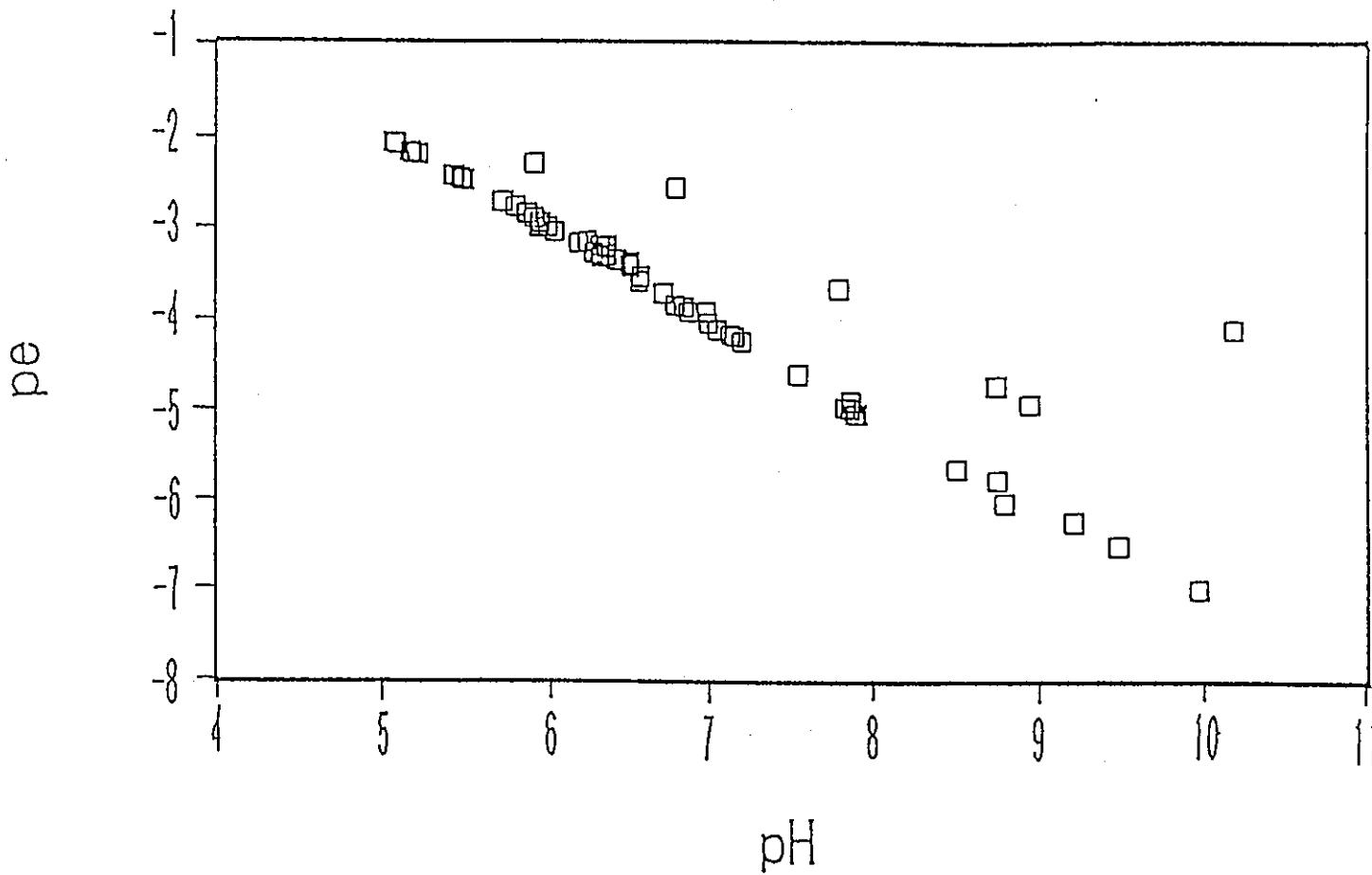
K ; カリ長石 ..... 4

黒雲母 (金雲母)

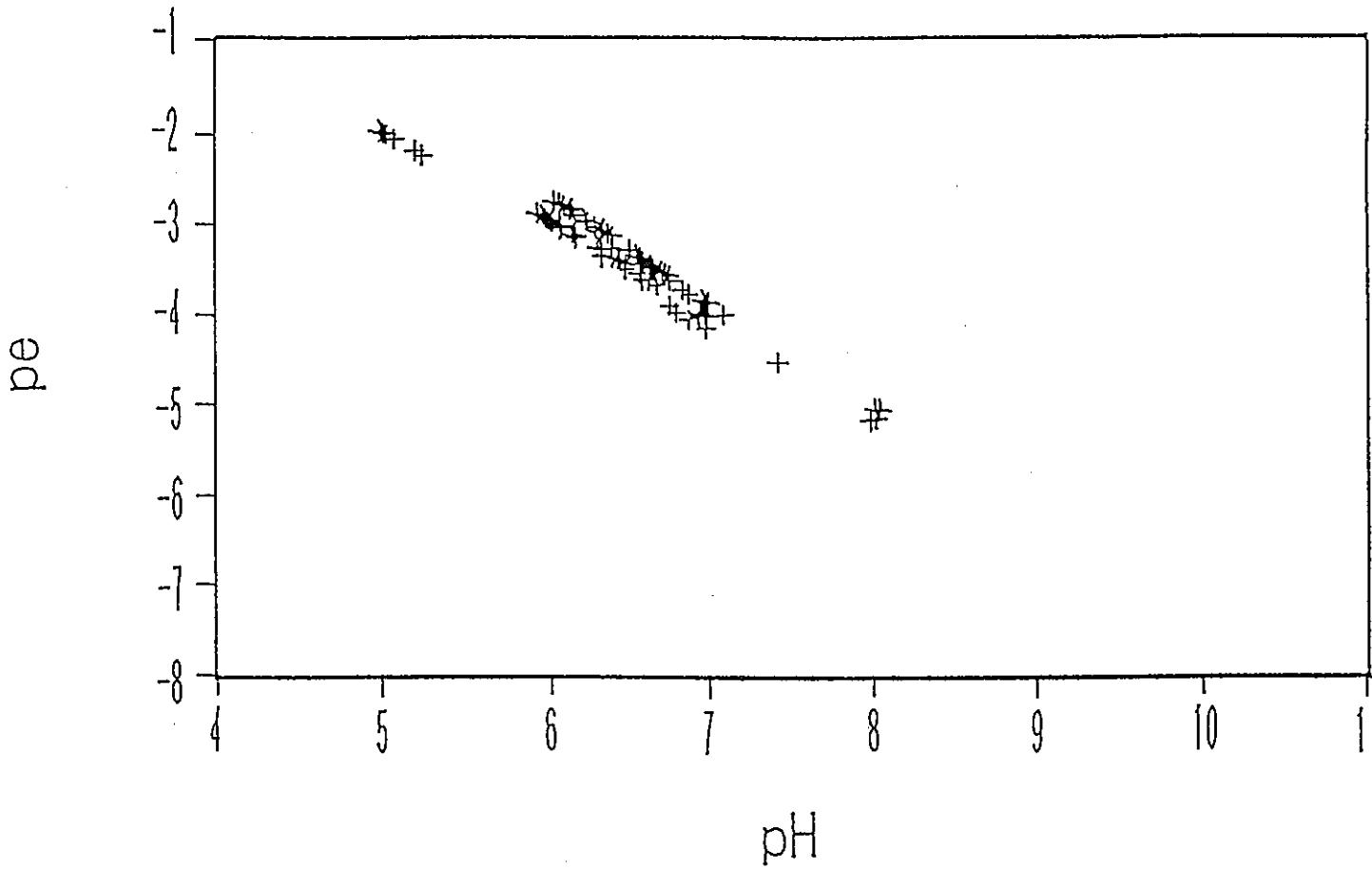
黒雲母 (アンナイト)

イライト (白雲母)

total 108ケース



付図2-1 降水系地下水に関する感度解析結果



付図2-2 海水系地下水に関する感度解析結果

### 付録3 シリカ鉱物の影響度解析

#### 1. 目的;

本報告書では、各地下水のモデルにおいて長期的に安定と考えられる石英と水溶液間の溶解平衡を考慮している。ここでは、石英との平衡に到達するまでに形成されると考えられるシリカ鉱物をモデルに組み込み、その影響を明らかにする事を目的とする。

#### 2. 内容;

本文中に記載されている5種類の地下水（降水系高pH型、降水系低pH型、降水系高pH型（仮想的酸化性地下水）、海水系高pH型、海水系低pH型）に対して、石英の代わりにそれぞれアモルファスシリカ、玉髄を考慮し地下水組成の解析を行った。解析で用いた熱力学データベース、地球化学コードは本文中に記載されたものと同一のものである。

#### 3. 結果;

解析の結果（シリカ濃度、pH）を付表3-1に示す。比較のために石英の場合の結果も合わせて記載する。

#### 4. 結論;

付表3-1より、高pHとなるのはいずれの地下水とも石英を考慮した場合であった。特に、高pH型（降水系高pH型、降水系高pH型（仮想的酸化性地下水）、海水系高pH型）の地下水は石英の効果が大きくなることが判った。また、シリカ濃度はいずれの地下水においても石英を考慮した場合が最も小さくなかった。

従って、核種移行の条件設定の観点から、地下水組成（ここではpH及びシリカ濃度）の極値を与えるシリカ鉱物は石英を考えておけばよい事が判った。

付表3-1 地下水組成に対するシリカ鉱物の影響

Si濃度単位: mol/l

		降水系 高pH型	降水系 低pH型	海水系 高pH型	海水系 低pH型	降水系高pH型 (仮想的酸化 性地下水)
石英	pH	8.74	5.74	7.98	6.30	10.01
アモルファスシリカ		7.02	5.72	5.32	6.30	8.93
玉髓		8.19	5.72	7.12	6.30	9.66
石英	Si濃度	1.8E-4	1.6E-4	1.5E-4	1.5E-4	4.4E-4
アモルファスシリカ		1.9E-3	1.9E-3	1.7E-3	1.8E-3	2.3E-3
玉髓		3.3E-4	3.2E-4	2.9E-4	2.9E-4	5.7E-4

#### 付録4 風送塩による地下水組成の影響度解析

##### 1. 目的

本報告書では、降水系地下水のモデル化において降水として純水( $\text{pH}=7.0, \text{pe}=4.0$ )を仮定している。我が国は島国であり降水においても、海水が蒸発しこれが風によって本土に運ばれ降水として作用することが考えられる。ここでは、降水として風送塩を考慮した場合、本文中に記載された地下水組成(表5.1.4、表5.1.5)に対してどの程度影響を及ぼすかを確認することを目的とする。

##### 2. 内容

降水系高pH型、降水系低pH型の2種類の地下水に対して、付表4-1に示す中部地域で観測された風送塩を含む降水として地下水組成の解析を実施した。なお、 $\text{pH}, \text{pe}$ は純水の値を仮定した。解析で用いた熱力学データベース、地球化学コードは本文中に記載されたものと同一のものである。

##### 3. 結果

解析の結果を付表4-2に示す。比較のために降水を純水とした場合の地下水組成についても合わせて示す。

##### 4. 結論

風送塩を考慮した場合、高pH型地下水のpHは下がる傾向にあり、低pH型地下水のpHは上がる傾向がある。以上のことから、地下水組成の幅を設定する観点においては純水を考えておけば地下水の極値が与えられる。従って、本検討では降水として純水を採用した。

付表4-1 風送塩を含む降水の組成

(単位; mol/l)

pH(-)	pe(-)	$\text{SO}_4^{2-}$	$\text{Na}^+$	$\text{Ca}^{2+}$	$\text{Mg}^{2+}$	$\text{Cl}^-$
7.0	4.0	3.5E-6	1.9E-5	3.2E-6	3.3E-6	2.1E-5

付表4-2 解析結果

(単位; mol/l)

	pH	pe	$\text{SO}_4^{2-}$	C	$\text{Na}^+$	$\text{K}^+$	$\text{Ca}^{2+}$	Fe	$\text{SiO}_2$	$\text{Cl}^-$
降水系 高pH型	8.7	-4.8	1.3E-4	6.9E-3	7.2E-3	1.9E-8	3.8E-5	6.3E-5	1.8E-4	—
降水系 高pH型*	8.2	-3.6	1.6E-4	1.2E-2	1.1E-2	7.9E-8	1.6E-4	7.8E-5	8.0E-5	2.1E-5
降水系 低pH型	5.7	-2.7	—	1.3E-1	2.5E-3	—	2.0E-3	8.2E-4	1.6E-4	—
降水系 低pH型*	6.1	-2.7	3.5E-6	1.4E-1	2.1E-3	—	3.8E-3	2.1E-3	7.7E-5	2.1E-5

\* : 風送塩を考慮した場合

C, Fe濃度はトータル濃度を記載。略字は付録3に同じ